

# 公告本

A4  
C4

申請日期	87 年 7 月 18 日
案 號	87111742
類 別	C08G 77/04, 6/00, H05B 37/14

(以上各欄由本局填註)

558561

## 發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	傳送電洞的聚合物，其製法，以及使用其之有機電發光元件
	英 文	Hole transporting polymer and organic electroluminescence device using the same
二、發明 人	姓 名	(1) 北野真 (2) 野口公信 (3) 大西敏博
	國 籍	(1) 日本                      (2) 日本                      (3) 日本 (1) 日本國茨城縣筑波市天久保二一一三一一〇—三〇六
	住、居所	(2) 日本國茨城縣筑波市大字南中妻三七〇—四九 (3) 日本國茨城縣筑波市春日三一七一一四九
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 住友化學工業股份有限公司 住友化学工業株式会社
	國 籍	(1) 日本
	住、居所 (事務所)	(1) 日本國大阪市中央區北浜四丁目五番三三號
	代 表 人 姓 名	(1) 香西昭夫

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

裝 訂 線

申請日期	87 年 7 月 18 日
案 號	87111742
類 別	

A4  
C4

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書		
一、發明 名稱	中 文	
	英 文	
二、發明人 創作	姓 名	<input type="checkbox"/> 山口扶美 <input type="checkbox"/> 長田岡規
	國 籍	<input type="checkbox"/> 日本 <input type="checkbox"/> 日本 <input type="checkbox"/> 日本國茨城縣土浦市乙戸南三一一四一二
	住、居所	<input type="checkbox"/> 日本國茨城縣筑波市春日二一四〇一一一三〇九
三、申請人	姓 名 (名稱)	
	國 籍	
	住、居所 (事務所)	
	代 表 人 姓 名	

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

PREP

# FREE

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
IPC分類：

A6  
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利, 申請日期: 案號: ☐有 ☐無主張優先權  
日本 1997 年 7 月 22 日 9-195465 ☒有主張優先權

有關微生物已寄存於: 寄存日期: 寄存號碼:

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

四、中文發明摘要(發明之名稱： 傳送電洞的聚合物，其製法，以及)  
使用其之有機電發光元件

具有特定重複單元與特定分子量之傳送電洞的聚合物，它擁有極佳的傳送電洞特性，並且在耐久性及生成膜的性質方面有優越的表現，而且使用傳送電洞的聚合物之有機電發光元件擁有極佳的發光特性。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

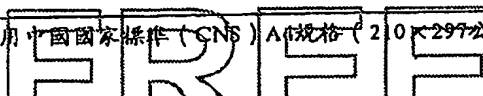
英文發明摘要(發明之名稱： HOLE TRANSPORTING POLYMER AND ORGANIC  
ELECTROLUMINESCENCE DEVICE USING THE SAME )

A hole transporting polymer having a specific repeating unit and specific molecular weight, which has excellent hole transporting property, and is superior in durability and film-forming property, and the organic EL device using the hole transporting polymer has excellent light emitting characteristics.

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製



## 五、發明說明(1)

### 發明背景

### 發明之範圍

本發明係與傳送電洞的聚合物，其製法，以及使用其之有機電發光元件（在下文中有時稱作“有機電發光元件”）有關。

### 相關技藝之敘述

使用無機螢光物質之無機電發光元件（在下文中有時稱作“無機電發光元件”）至今被應用於平面光源（如背光），顯示器元件（如平板顯示器等），然而，要驅動這些元件需要高壓的交流電。

T a n g 等人近來建造了一組具有雙層結構之有機電發光元件，它包含有機螢光染料之發光層及有機傳送電荷的化合物層。由於有機電發光元件擁有除了低電壓驅動及高光度之外還可以輕易獲得各式各樣顏色之發射的特色，與無機電發光元件相較之下，關於元件結構，有機螢光染料及有機傳送電荷的化合物等的發展與改進所作的各種嘗試已經被提出來報告了 [Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 27, page L 269(1988); 與 J. Appl. Phys., Vol. 65, page 3610(1989)]。

就傳送電洞的物質而言，舉例來說，已記載有各式各樣的化合物，諸如噁二唑衍生物，噁唑衍生物，脲衍生物，三芳基吡唑啉衍生物，芳基胺衍生物，芪衍生物等。

在有機電發光元件僅使用低分子量的傳送電洞的物質的情況下，傳送電洞層之機械強度及熱阻尚屬不足。就傳

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

## 五、發明說明(2)

送電洞層成型之方法而言，一般所使用的是在真空狀態下積鍍，但存在著高生產成本的問題。相反地，爲了改良耐久性及薄膜成型的性質之目的，有許多利用傳送電洞的聚合物之實例被提出報告，諸如使用支鏈上具有芳香胺基團之聚苯乙烯衍生物之有機電發光元件（JP-A-8-259935），使用擁有芳香胺基團之聚酯之有機電發光元件等。然而，在驅動的穩定性方面看來，這些有機電發光元件未必能令人滿意。

易言之，在使用了傳送電洞的物質，像是有機電發光元件之電子照像術所使用的感光層中，我們爲了預防由電量放電所引起的惡化的目的，而添加了聚矽氧烷。再者，利用將矽傳送電洞物質與可固化的聚矽氧烷混合，並且爲了賦予聚矽氧烷傳送電洞的性質之目的，而將該混合物固化，以獲得傳送電洞的聚矽氧烷，已被提出報告（JP-A-9-124943）。

茲列舉出在有機電發光元件中利用傳送電洞的聚矽氧烷之實例，利用把支鏈上具有咪唑基團之聚矽氧烷與發光聚合物混合而獲得之有機電發光元件已被提出（WO 9501871）。

## 發明之梗概

本發明之目的係提供擁有極佳的傳送電洞的性質，耐久性及薄膜成型性質之傳送電洞之聚合物，其製法，以及使用傳送電洞之聚合物而擁有極佳發光特性之有機電發光

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 3 )

元件。

本發明者經密集地研究以解決這些問題，而發現特有的新穎傳送電洞的聚合物擁有極佳的傳送電洞性質，持久性及薄膜成型性質，並且發現利用傳送電洞之聚合物所製成的有機電發光元件擁有極佳的發光特性。因而能實現本發明。

## 發明之梗概

這就是說，本發明係與〔1〕含有以下面的通式（1）來代表的重複結構單元之傳送電洞之聚合物有關，而該聚合物擁有  $10^3$  至  $10^7$  的聚苯乙烯對比數平均分子量：

其中  $R_1$  代表具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基； $A_{r1}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團，或以下面的通式（2）來代表的芳基叉乙基叉基團； $A_{r2}$  與  $A_{r3}$  各代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基，以下面的通式（3）來代表的芳香胺基團，或以下面的通式（4）來代表的芳基叉乙基叉基團；並且在  $A_{r1}$  與  $A_{r2}$  之間，或  $A_{r1}$  與  $A_{r3}$  之間，或  $A_{r2}$  與  $A_{r3}$  之間形成環：

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

總

修正  
補充

## 五、發明說明(4)

其中  $A r_1$  與  $A r_5$  各代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉乙基團； $R_2$  與  $R_3$  各代表氫原子，具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基：

其中  $A r_6$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團； $R_4$  與  $R_5$  各代表具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基；並且在  $A r_6$  與  $R_4$  之間，或  $A r_6$  與  $R_5$  之間，或  $R_4$  與  $R_5$  之間形成環：

其中  $A r_7$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團； $R_6$  與  $R_7$  各代表氫原子，具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基； $A r_8$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基。

本發明亦與〔2〕含有以下面的通式(5)來代表的重複結構單元之傳送電洞的聚合物有關，而其擁有  $10^3$  至  $10^7$  的聚苯乙烯對比數平均分子量：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

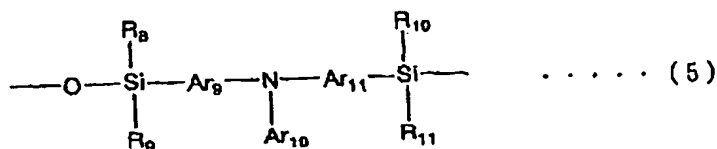
裝

訂

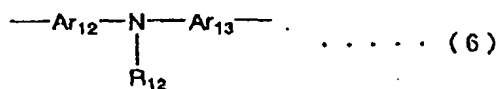
線



## 五、發明說明(5)



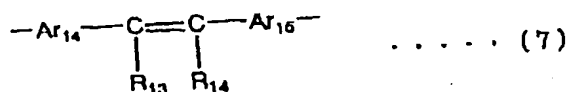
其中  $Ar_9$  與  $Ar_{11}$  各代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團，以下面的通式 (6) 來代表的芳香胺基團，或以下面的通式 (7) 來代表芳基叉乙基叉基團； $Ar_{10}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基，以下面的通式 (8) 來代表的芳香胺基團，或以下面的通式 (9) 來代表的芳基叉乙基叉基團；並且在  $Ar_9$  與  $Ar_{10}$  之間，或  $Ar_9$  與  $Ar_{11}$  之間，或  $Ar_{10}$  與  $Ar_{11}$  之間形成環；又  $R_8$ 、 $R_9$ 、 $R_{10}$  及  $R_{11}$  各代表羥基，具有 1 至 20 個碳原子的烷基或烷氧基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基，以下面的通式 (10) 或 (12) 來代表的基團，或者二價的氫原子，它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鍵接在分子中鄰近矽原子的位置上：



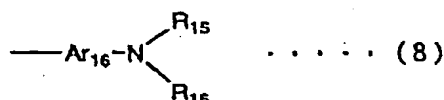
其中  $Ar_{12}$  與  $Ar_{13}$  各代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團； $R_{12}$  代表具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基；並且在  $Ar_{12}$  與  $Ar_{13}$  之間，或  $Ar_{12}$  與  $R_{12}$  之間，或  $Ar_{13}$  與  $R_{12}$  之間形成環：

FRFE

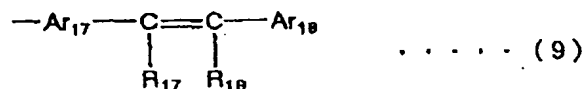
## 五、發明說明 (6)



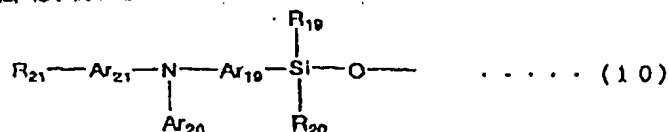
其中  $\text{Ar}_{14}$  與  $\text{Ar}_{15}$  各代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團；而  $\text{R}_{13}$  與  $\text{R}_{14}$  各代表氫原子；具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基：



其中  $\text{Ar}_{16}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團；  
 $\text{R}_{15}$  與  $\text{R}_{16}$  各代表具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基；並且在  $\text{Ar}_{16}$  與  $\text{R}_{15}$  之間，或  $\text{Ar}_{16}$  與  $\text{R}_{16}$  之間，或  $\text{R}_{15}$  與  $\text{R}_{16}$  之間形成環：

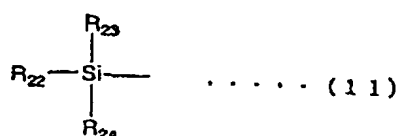


其中  $\text{Ar}_{17}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團；  
 $\text{R}_{17}$  與  $\text{R}_{18}$  各代表氫原子，具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基；而  $\text{Ar}_{18}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基：

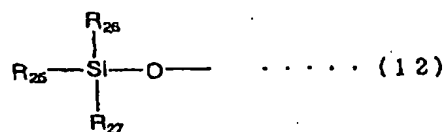


# 五、發明說明(7)

其中  $A_{r19}$  與  $A_{r21}$  各代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團，以上面的通式 (6) 來代表的芳香胺基團，或以上面的通式 (7) 來代表的芳基叉乙基叉基團； $A_{r20}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基，以上面的通式 (8) 來代表的芳香胺基團，或以上面的通式 (9) 來代表的芳基叉乙基叉基團；並且在  $A_{r19}$  與  $A_{r20}$  之間，或  $A_{r19}$  與  $A_{r21}$  之間，或  $A_{r20}$  與  $A_{r21}$  之間形成環； $R_{19}$  與  $R_{20}$  各代表羥基，具有 1 至 20 個碳原子的烷基或烷氧基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基，或者二價的氧原子，它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鍵接在分子中鄰近矽原子的位置上； $R_{21}$  代表氫原子，或以下面的通式 (11) 來代表的基團：



其中  $R_{22}$ 、 $R_{23}$  與  $R_{24}$  各代表羥基，具有 1 至 20 個碳原子的烷基或烷氧基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基：



其中  $R_{25}$ 、 $R_{26}$  與  $R_{27}$  各代表具有 1 至 20 個碳原子的

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

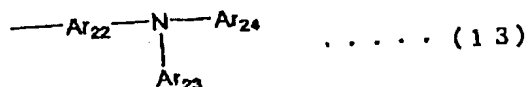
裝

訂

線

# 五、發明說明(8)

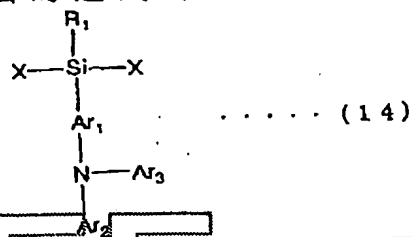
烷基，具有3至20個碳原子的環烷基，具有6至30個碳原子的芳基，或具有7至32個碳原子的芳烷基，或以上的通式(9)來代表的芳基叉乙基叉基團，或以下面的通式(13)來代表的芳香胺基團：



其中Ar<sub>22</sub>代表具有6至30個碳原子的芳基叉基團，以上的通式(6)來代表的芳香胺基團，或以上的通式(7)來代表的芳基叉乙基叉基團；Ar<sub>23</sub>與Ar<sub>24</sub>各代表具有6至30個碳原子的芳基，以上的通式(8)來代表的芳香胺基團，或以上的通式(9)來代表的芳基叉乙基叉基團。

本發明亦與〔3〕依據〔2〕之傳送電洞之聚合物有關，其中以上的通式(12)來代表的複合基團，係以根據除前述的複合基團中所含有的矽原子以外，屬於前述的傳送電洞的聚合物之矽原子總數10mol%至150mol%的份量，而羥基基團的含量係低於根據除前述的複合基團中所含有的矽原子以外，屬於前述的傳送電洞之聚合物之矽原子總數10mol%以下。

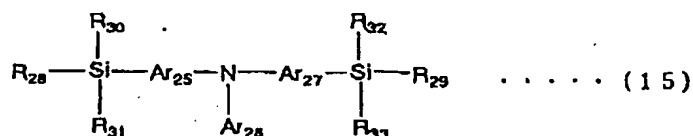
本發明亦與〔4〕製造〔1〕之傳送電洞的聚合物之方法有關，其中至少一種以下面的通式(14)來代表的矽烷化合物受水解及縮合：



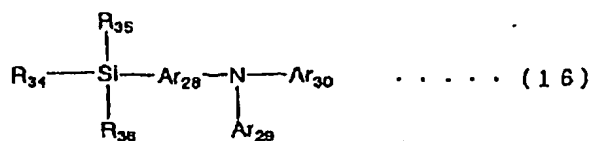
## 五、發明說明(9)

其中X代表鹵素原子，或具有1至20個碳原子的烷氧基團；R<sub>1</sub>、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>與Ar<sub>3</sub>乃如〔1〕中所述的；並且在Ar<sub>1</sub>與Ar<sub>2</sub>之間，或Ar<sub>1</sub>與Ar<sub>3</sub>，或Ar<sub>2</sub>與Ar<sub>3</sub>之間形成環。

本發明亦與〔5〕製造〔2〕之傳送電洞之聚合物之方法有關，其中一種以上以下面的通式(15)來代表的矽烷化合物，或一種以上以下面的通式(15)來代表的矽烷化合物與一種以上以下面的通式(16)來代表的矽烷化合物之混合物受水解與縮合。



其中R<sub>30</sub>、R<sub>31</sub>、R<sub>32</sub>與R<sub>33</sub>各代表鹵素原子，具有1至20個碳原子的烷基烷氧基，具有3至20個碳原子的環烷基，具有6至30個碳原子的芳基，或具有7至32個碳原子的芳烷基；R<sub>28</sub>與R<sub>29</sub>各代表羥基，或具有1至20個碳原子的烷氧基；Ar<sub>25</sub>與Ar<sub>27</sub>與在〔2〕之通式(5)中所定義的Ar<sub>9</sub>或在〔2〕之通式(10)中所定義的Ar<sub>19</sub>相同；Ar<sub>26</sub>與〔2〕之通式(5)中所定義的Ar<sub>10</sub>相同；並且在Ar<sub>25</sub>與Ar<sub>26</sub>之間，或Ar<sub>25</sub>與Ar<sub>27</sub>之間，或Ar<sub>26</sub>與Ar<sub>27</sub>之間形成環：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

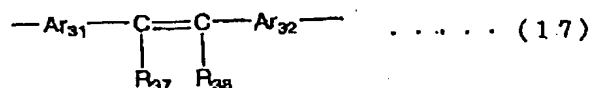
訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

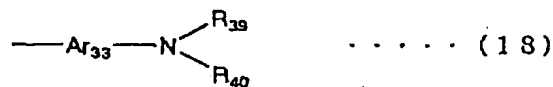
# 五、發明說明 ( 10 )

其中  $R_{35}$  與  $R_{36}$  各代表鹵素原子，具有 1 至 20 個碳原子的烷基或烷氧基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基； $R_{34}$  代表鹵素原子，具有 1 至 20 個碳原子的烷氧基； $Ar_{28}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團，或以下面的通式 ( 17 ) 來代表的芳基叉乙基叉基團：

$Ar_{29}$  與  $Ar_{30}$  各代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基，以下面的通式 ( 18 ) 來代表的芳香胺基團，或以下面的通式 ( 19 ) 來代表的芳基叉乙基叉基團；並且在  $Ar_{28}$  與  $Ar_{29}$  之間，或  $Ar_{28}$  與  $Ar_{30}$  之間，或  $Ar_{29}$  與  $Ar_{30}$  之間形成環：



其中  $Ar_{31}$  與  $Ar_{32}$  各代表具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團； $R_{37}$  與  $R_{38}$  各代表氫原子，具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基：



其中  $Ar_{33}$  代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團； $R_{39}$  與  $R_{40}$  各代表具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基；並且在  $Ar_{33}$  與

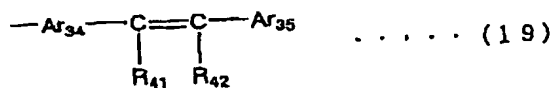
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

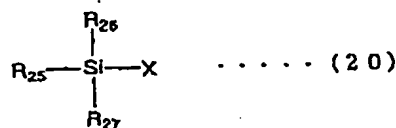
## 五、發明說明 ( 11 )

R<sub>39</sub> 之間，或 A r<sub>33</sub> 與 R<sub>40</sub> 之間，或 R<sub>39</sub> 與 R<sub>40</sub> 之間形成環：



其中 A r<sub>34</sub> 代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團；  
R<sub>41</sub> 與 R<sub>42</sub> 各代表氫原子，具有 1 至 20 個碳原子的烷基，具有 3 至 20 個碳原子的環烷基，具有 6 至 30 個碳原子的芳基，或具有 7 至 32 個碳原子的芳烷基；而 A r<sub>35</sub> 代表具有 6 至 30 個碳原子的芳基。

本發明亦與〔6〕製造〔2〕或〔3〕之傳送電洞之聚合物之方法有關，其中由〔5〕所獲得之傳送電洞之聚合物與以下面的通式（20）來代表的化合物反應，



其中 X 代表鹵素原子，或具有 1 至 20 個碳原子的烷氧基；R<sub>25</sub>、R<sub>26</sub> 與 R<sub>27</sub> 係如通式（12）中所定義的。

本發明亦與〔7〕含有陰極與陽極之電極對之有機電發光元件有關，在電極中至少有一者是透明的，或是半透明的，而在電極之間形成一層以上的有機物質，其中有機物質層含有在〔1〕至〔3〕中的任何一項所述的傳送電洞的聚合物。

本發明亦與〔8〕含有陰極與陽極之電極對之有機電發光元件有關，在電極中至少有一個是透明的，或是半透

（請先閱讀背面之注意事項再填本頁）

裝

訂

修正  
B7  
年 月 日  
補充

## 五、發明說明 ( 12 )

明的，而在電極之間會形成發光層，其中發光層含有在〔 1 〕至〔 3 〕中的任何一項所述的傳送電洞的聚合物。

本發明亦與〔 9 〕含有陰極與陽極之電極對之有機電發光元件有關，在電極中至少有一者是透明的或是半透明的，而在電極之間形成發光層，其中就近地供應含有在〔 1 〕至〔 3 〕中的任何一項所述的傳送電洞的聚合物之傳送電洞層給介於陽極與發光層之間的發光層。

本發明亦與〔 10 〕依據〔 8 〕或〔 9 〕之有機電發光元件有關，其中就近地供應含有傳送電子之化合物之傳送電子層給介於陽極與發光層之間的發光層。

本發明亦與〔 11 〕依據〔 8 〕至〔 10 〕中的任何一項之有機電發光元件有關，其中發光層含有發光聚合物，該發光聚合物含有以下面的通式（ 21 ）來代表的重複結構單元，該單元以根據重複結構單元總數的 50 mol % 以上的比例存在，而且該聚合物具有  $10^3$  至  $10^7$  的聚苯乙烯對比數平均分子量，



其中  $A_r$  代表芳基叉基團或具有 4 至 20 個碳原子之雜環化合物基團，它參與共軛鍵；而  $R$  與  $R'$  各代表選自下列基團之基團：氫原子，具有 1 至 20 個碳原子之烷基，具有 6 至 20 個碳原子之芳基，具有 4 至 20 個碳原子之雜環化合物與氰基。

發明之詳述

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線



五、發明說明 ( 13 )

修正  
年月日  
補充

本發明之第一種傳送電洞之聚合物，係含有以上面的通式 ( 1 ) 來代表的重複結構單元之傳送電洞之聚合物，並且具有  $10^3$  至  $10^7$  的聚苯乙烯對比數平均分子量。就薄膜成型的性質看來，聚苯乙烯對比數平均分子量以  $10^3$  至  $10^6$  為宜。

通式 ( 1 ) 中， $R_1$  係具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基，或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，合宜的是具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，具有 6 至 20 個碳原子之芳基，或具有 7 至 22 個碳原子之芳烷基，而更合宜的是具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基。

$R_1$  之特例，包括：烷基基團，諸如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、己基、庚基、辛基等；環烷基基團，諸如環丙基、環丁基、環戊基、環己基等；芳基基團，諸如可被甲基、乙基、丙基取代的苯基、萘基、蒽基、聯苯基等。以及芳烷基基團，諸如可被甲基、乙基、丙基取代的苄基、乙氧苄基等。

在通式 ( 1 ) 中， $A_r$  芳基叉基團係具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而可以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐，苯撐，萘撐或亞蒽基基團更合宜。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(14)

A r<sub>1</sub> 芳基叉基團之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯撐基團、萘撐基團、亞蔥基基團等。

除此之外，通式(1)中 A r<sub>1</sub> 可以是以上面的通式(2)來代表的乙基叉基團。在通式(2)中，A r<sub>4</sub> 與 A r<sub>5</sub> 各為具有6至30個碳原子之芳基叉基團，以具有6至20個碳原子之芳基叉基團為宜，而以可以被具有1至6個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有3至6個碳原子之環烷基取代的苯撐基團更為合宜。

A r<sub>4</sub> 與 A r<sub>5</sub> 之特例各自包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯撐基團、萘撐基團、亞蔥基基團等。

在通式(2)中，R<sub>2</sub> 與 R<sub>3</sub> 各為氫原子，具有1至20個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有3至20個碳原子之環烷基，具有6至30個碳原子之芳基，或具有7至32個碳原子之芳烷基，以氫原子，具有1至10個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有3至10個碳原子之環烷基，具有6至20個碳原子之芳基，或具有7至22個碳原子之芳烷基為宜，而以氫原子，具有1至6個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或可以被具有1至6個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或具有3至6個碳原子之環烷基取代的苯撐基團更合宜。

R<sub>2</sub> 與 R<sub>3</sub> 之特例各自包括：氫原子、甲基、乙基、丙基或可以被甲基、乙基、丙基所取代的苯基基團。

在通式(1)中，A r<sub>2</sub> 與 A r<sub>3</sub> 芳基基團各為具有6至30個碳原子之芳基，以具有6至20個碳原子之芳基

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(15)

爲宜，而可以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或萘基基團更合宜。

$Ar_2$  與  $Ar_3$  芳基基團之特例各包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基基團、萘基基團、蒽基基團等。

除此之外，通式(1)中  $Ar_2$  與  $Ar_3$  可各爲以通式(3)來代表的芳香胺基團。在通式(3)中， $Ar_6$  爲具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團爲宜，而可以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或聯苯撐基團更合宜。

$Ar_6$  特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯撐基團、萘撐基團、亞蒽基基團、聯苯撐基團等。

在通式(3)中， $R_4$  與  $R_5$  各爲具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基、或具有 7 至 32 個碳原子之芳基，以具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，具有 6 至 20 個碳原子之芳基，或具有 7 至 22 個碳原子之芳烷基爲宜，而可以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或萘基基團更合宜。

$R_4$  與  $R_5$  之特例各自包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蒽基、聯苯基基團等。

在通式(3)中，在  $Ar_6$  與  $R_4$  之間，或  $Ar_6$  與  $R_5$

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明 (16)

之間，或  $R_4$  與  $R_5$  之間形成環。

除此之外，在通式 (1) 中， $A_{r2}$  與  $A_{r3}$  可各為以通式 (4) 來代表的芳基叉乙基叉基團。在通式 (4) 中， $A_{r7}$  係具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐基團更為合宜。

$A_{r7}$  之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯撐基團、萘撐基團、亞蒽基基團等。

在通式 (4) 中， $A_{r8}$  係具有 6 至 30 個碳原子之芳基基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基基團為宜，而以可被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團更為合宜。

$A_{r8}$  之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基基團、萘基基團、蒽基基團等。

在通式 (4) 中， $R_6$  與  $R_7$  各為氫原子，具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，以氫原子，具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，具有 6 至 20 個碳原子之芳基或具有 7 至 22 個碳原子之芳烷基為宜，而以氫原子，具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基、或可被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基、或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

91.4.4

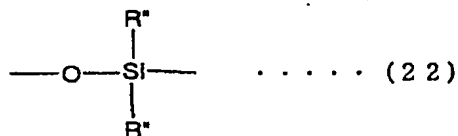
## 五、發明說明 ( 17 )

更為合宜。

R<sub>6</sub> 與 R<sub>7</sub> 之特例各自包括：氫原子、甲基、乙基、丙基、或被甲基、乙基或丙基取代的苯基基團。

在通式 ( 1 ) 中，在 A r<sub>1</sub> 與 A r<sub>2</sub> 之間，或 A r<sub>1</sub> 與 A r<sub>3</sub> 之間，或 A r<sub>2</sub> 與 A r<sub>3</sub> 之間形成環。

第一種傳送電洞之聚合物可以是只含有以通式 ( 1 ) 來代表的重複結構單元的共聚物。其他可共聚物的重複結構單元之實例，包括以下面的通式 ( 2 2 ) 來代表的重複結構單元。共聚物之實例包括：含有以通式 ( 1 ) 來代表的重複結構單元，以及下面的通式 ( 2 2 ) 來代表的重複結構單元的至少一種在內的共聚物。共聚物之組成沒有明確的限制，只要傳送電洞的聚合物之性質不惡化的話。根據重複單元之總數，以通式 ( 1 ) 來代表的重複結構單元之比例，一般是 2 0 - 1 0 0 m o l %，而以 5 0 - 1 0 0 m o l 為宜。



其中 R'' 代表具有 1 至 1 2 個碳原子之烷基或芳基基團，它可以是相同的，或是不同的。

本發明之第二種傳送電洞之聚合物，係含有以上面的通式 ( 5 ) 來代表的重複結構單元，並且具有 1 0<sup>3</sup> 至 1 0<sup>7</sup> 的聚苯乙烯對比數平均分子量之傳送電洞之聚合物。就薄膜成型性質而論，聚苯乙烯對比數平均分子量以 1 0<sup>3</sup>

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明 ( 18 )

至  $10^6$  爲宜。

第二種傳送電洞之聚合物，可以是共聚物，它含有除  
以通式 ( 5 ) 來代表的重複單元以外之重複結構單元，只  
要傳送電洞之聚合物之性質不惡化的話。其他可共聚物的  
重複結構單元之實例，包括以上面的通式 ( 22 ) 來代表  
的重複結構單元在內。根據重複單元之總數，以通式 ( 5 )  
來代表的重複結構單元之比例，一般是  $20 - 100$   
 $m o l \%$ ，而以  $50 - 100 m o l \%$  爲宜。

在通式 ( 5 ) 中， $R_8$ ， $R_9$ ， $R_{10}$  或  $R_{11}$  爲各羥基  
，具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，  
具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子  
之芳基，或具有 7 至 32 個碳原子芳烷基，以通式 ( 10 )  
來代表的基團，以通式 ( 12 ) 來代表的基團，或二價  
的氧原子，它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉  
由交聯而鍵接在分子中鄰近矽原子的位置上，以羥基，具  
有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，或具  
有 3 至 10 個碳原子之環烷基，以通式 ( 10 ) 來代表的  
基團，以通式 ( 12 ) 來代表的基團，或二價的氧原子，  
它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鍵  
接在分子中鄰近矽原子的位置上爲宜，而以羥基，或具有  
1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，以通式 ( 10 )  
來代表的基團，以通式 ( 12 ) 來代表的基團，或  
二價的氧原子，它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，  
或藉由交聯而鍵接在分子中近鄰矽原子的位置上更爲合宜

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

## 五、發明說明 ( 19 )

$R_8$ 、 $R_9$ 、 $R_{10}$  或  $R_{11}$  之特例各包括：羥基基團；烷基基團，諸如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、己基、庚基、辛基等；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等；環烷基基團，諸如環丙基、環丁基、環戊基、環己基等；被甲基、乙基或丙基取代的芳基基團，諸如苯基、萘基、蔥基、聯苯基等；及被甲基、乙基或丙基取代的苄基、乙氧苄基等。

可藉由交聯而鏈接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鏈接在分子中矽原子鄰近的位置上之二價的氧原子，詳細的意義是當因交聯而形成矽氧烷鍵時，氧原子被兩個矽原子所包夾。

在通式 ( 5 ) 中， $A_{r_9}$  與  $A_{r_{11}}$  芳基叉基團各為具有 6 至 30 個碳原子的芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以可被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或萘撐基團更合宜。

$A_{r_9}$  與  $A_{r_{11}}$  芳基叉基團之特例，各包括：被甲基、乙基或丙基取代的萘撐、萘撐、亞蔥基等。

除此之外，通式 ( 5 ) 中  $A_{r_9}$  與  $A_{r_{11}}$  可以是以通式 ( 6 ) 來代表的芳香胺基團。在通式 ( 6 ) 中， $A_{r_{12}}$  與  $A_{r_{13}}$  各為具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(20)

有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團爲宜，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或聯苯撐更合宜。

$Ar_{12}$  與  $Ar_{13}$  之特例各自包括：被甲基、乙基或丙基取代的苯撐、萘撐、亞蒽基、聯苯撐等。

在通式(6)中， $R_{12}$  是具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，以具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，具有 6 至 20 個碳原子之芳基或具有 7 至 22 個碳原子之芳烷基爲宜，而可被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或萘基基團更合宜。

$R_{12}$  之特例，包括：被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蒽基、聯苯基等。

在通式(6)中，在  $Ar_{12}$  與  $Ar_{13}$  之間，在  $Ar_{12}$  與  $R_{12}$  之間，或在  $Ar_{13}$  與  $R_{12}$  之間會形成環。

除此之外，在通式(5)中， $Ar_9$  與  $Ar_{11}$  可各爲以通式(7)來代表的芳基叉乙基叉基團。在通式(7)中， $Ar_{14}$  與  $Ar_{15}$  各爲具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團爲宜，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐基團更合宜。

$Ar_{14}$  與  $Ar_{15}$  之特例，各包括：可被甲基、乙基或

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

錄



## 五、發明說明 (21)

丙基取代的苯撐、萘撐、亞蒽基等。

在通式 (7) 中， $R_{13}$  與  $R_{14}$  各為氫原子，具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基，或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，以氫原子，具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，具有 6 至 20 個碳原子的芳基或具有 7 至 22 個碳原子之芳烷基為宜，而以氫原子，具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團更為合宜。

$R_{13}$  與  $R_{14}$  之特例，各包括：氫原子、甲基、乙基、丙基或被甲基、乙基或丙基取代的苯基基團。

在通式 (5) 中， $Ar_{10}$  芳基基團係具有 6 至 30 個碳原子之芳基，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基為宜，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基基團，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或萘基基團更為合宜。

$Ar_{10}$  芳基基團之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蒽基等。

除此之外，在通式 (5) 中， $Ar_{10}$  可以是以通式 (8) 來代表的芳香胺基團。

在通式 (8) 中， $Ar_{10}$  係具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團為宜。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 (22)

，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或聯苯撐基團更為合宜。

$Ar_{16}$  之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯撐、萘撐、亞蒽基、聯苯撐等。

在通式 (8) 中， $R_{15}$  與  $R_{16}$  各為具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基，或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，以具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，具有 6 至 20 個碳原子之芳基或具有 7 至 22 個碳原子之芳烷基為宜，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或萘基基團更為合宜。

$R_{15}$  與  $R_{16}$  之特例，各包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蒽基、聯苯基等。

在通式 (8) 中，在  $Ar_{16}$  與  $R_{15}$  之間， $Ar_{16}$  與  $R_{16}$  之間，或  $R_{15}$  與  $R_{16}$  之間形成環。

除此之外，在通式 (5) 中， $Ar_{10}$  可以是以通式 (9) 來代表的芳基叉乙基叉基團。在通式 (9) 中， $Ar_{17}$  係具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐基團更為合宜。

$Ar_{17}$  之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 (23)

苯撐、萘撐、亞蒽基等。

在通式 (9) 中， $Ar_{18}$  係具有 6 至 30 個碳原子之芳基，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基為宜，而以被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基、或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團更合宜。

$Ar_{18}$  之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蒽基等。

在通式 (9) 中， $R_{17}$  與  $R_{18}$  各為氫原子，具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基，或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，以氫原子，具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，具有 6 至 20 個碳原子之芳基，或具有 7 至 22 個碳原子之芳烷基為宜，而以氫原子，具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團更為合宜。

$R_{17}$  與  $R_{18}$  之特例，各包括：氫原子、甲基、乙基、丙基或可被甲基、乙基或丙基取代的苯基。

在通式 (5) 中，在  $Ar_9$  與  $Ar_{10}$  之間，或  $Ar_9$  與  $Ar_{11}$  之間，或  $Ar_{10}$  與  $Ar_{11}$  之間形成環。

在通式 (10) 中， $R_{19}$  與  $R_{20}$  各為羥基，具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基或

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

## 五、發明說明(24)

具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，或二價的氧原子，它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鍵接在分子中鄰近矽原子的位置上，以羥基，具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，或二價的氧原子，它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鍵接在分子中鄰近矽原子的位置上，而以羥基，具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，或二價的氧原子，它藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上或藉由交聯而鍵結在分子中鄰近矽原子的位置上。

R<sub>10</sub> 與 R<sub>20</sub> 之特例，各包括：羥基基團；烷基，諸如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、己基、庚基、辛基等；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊丁氧基、己丁氧基、庚丁氧基、辛丁氧基等；環烷基基團，諸如環庚基、環丁基、環戊基、環己基等；芳基基團，諸如可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蒽基、聯苯基等；以及芳烷基基團，諸如可被甲基、乙基或丙基取代的苄基、苄乙基等。

在通式(10)之中，R<sub>21</sub>係氫原子，或以通式(11)來代表的基團，其中 R<sub>22</sub>、R<sub>23</sub> 與 R<sub>24</sub> 各代表羥基，具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基，或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，以羥基，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

# 五、發明說明 ( 25 )

或具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基為宜，而以羥基或具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈烷基或烷氧基更為合宜。

$R_{22}$ 、 $R_{23}$  與  $R_{24}$  之特例，各包括：羥基基團；烷基基團，諸如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、己基、庚基、辛基等；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊丁氧基、己丁氧基、庚丁氧基、辛丁氧基等；環烷基基團，諸如環丙基、環丁基、環戊基、環己基等；芳基基團，諸如可被甲基、乙基、丙基取代的苯基、萘基、蒽基、聯苯基等；以及芳烷基基團，諸如可被被甲基、乙基、丙基取代的苄基、苯乙基等。

在通式 ( 10 ) 中， $Ar_{19}$  或  $Ar_{21}$  芳基叉基團各為具有 6 至 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以可被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或萘撐基團更為合宜。

$Ar_{19}$  與  $Ar_{21}$  芳基叉基團之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯撐、萘撐、亞蒽基基團等。

除此之外，在通式 ( 10 ) 中， $Ar_{19}$  與  $Ar_{21}$  各為以通式 ( 6 ) 來代表的芳香胺基團，或以通式 ( 7 ) 來代表的芳基叉乙基叉基團。

在通式 ( 10 ) 中， $Ar_{20}$  芳基基團之實例包括：具有 6 至 30 個碳原子之芳基基團，以可被具有 1 至 6 個碳

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明 (26)

原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基、萘基或亞萘基基團為宜。

A r<sub>20</sub> 芳基基團之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蒽基等。

在通式 (10) 中，A r<sub>20</sub> 可以是以通式 (8) 來代表的芳香胺基團，或是以通式 (9) 來代表的芳基叉乙基叉基團。

在通式 (10) 中，在 A r<sub>19</sub> 與 A r<sub>20</sub> 之間，或 A r<sub>19</sub> 與 A r<sub>21</sub> 之間，或 A r<sub>20</sub> 與 A r<sub>21</sub> 之間形成環。

在通式 (12) 之中，R<sub>25</sub>、R<sub>26</sub> 與 R<sub>27</sub> 各代表具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，具有 3 至 20 個碳原子之環烷基，具有 6 至 30 個碳原子之芳基，或具有 7 至 32 個碳原子之芳烷基，以通式 (9) 來代表的芳基叉乙基叉基團，以通式 (B) 來代表的芳香胺基團，以具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，具有 3 至 10 個碳原子之環烷基，以通式 (9) 來代表的芳基叉乙基叉基團，或以通式 (B) 來代表的芳香胺基團為宜，而以具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，以通式 (9) 來代表的芳基叉乙基叉基團，或以通式 (13) 來代表的芳香胺基團更為合宜。

R<sub>25</sub>、R<sub>26</sub> 與 R<sub>27</sub> 之特例，各包括：烷基基團，諸如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、己基、庚基、辛基等；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 27 )

、叔丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等；環烷基基團，諸如環丙基、環丁基、環戊基、環己基等；芳基基團，諸如可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蔥基、聯苯基等；以及芳烷基基團，諸如被甲基、乙基或丙基取代的苄基，苄乙基基團等。

在通式 ( 1 3 ) 之中， $A r_{22}$  芳基叉基團係具有 6 至 3 0 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 至 2 0 個碳原子之芳基叉為宜，而以可被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或萘撐基團更為合宜。

$A r_{22}$  芳基叉之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯撐、萘撐、亞蔥基基團等。

除此之外，在通式 ( 1 3 ) 中， $A r_{22}$  可以是以通式 ( 6 ) 來代表的芳香胺基團，或是以通式 ( 7 ) 來代表的芳基叉乙基叉基團。

在通式 ( 1 3 ) 之中， $A r_{23}$  與  $A r_{24}$  芳基基團係具有 6 至 3 0 個碳原子之芳基基團，以具有 6 至 2 0 個碳原子芳基基團為宜，而以可被具有 1 至 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或被具有 3 至 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或聯苯基更為合宜。

$A r_{23}$  與  $A r_{24}$  芳基基團之特例，包括：可被甲基、乙基或丙基取代的苯基、萘基、蔥基等。

在通式 ( 1 3 ) 中， $A r_{23}$  與  $A r_{24}$  各為以通式 ( 8 ) 來代表的芳香胺基團，或是以通式 ( 9 ) 來代表的芳基

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

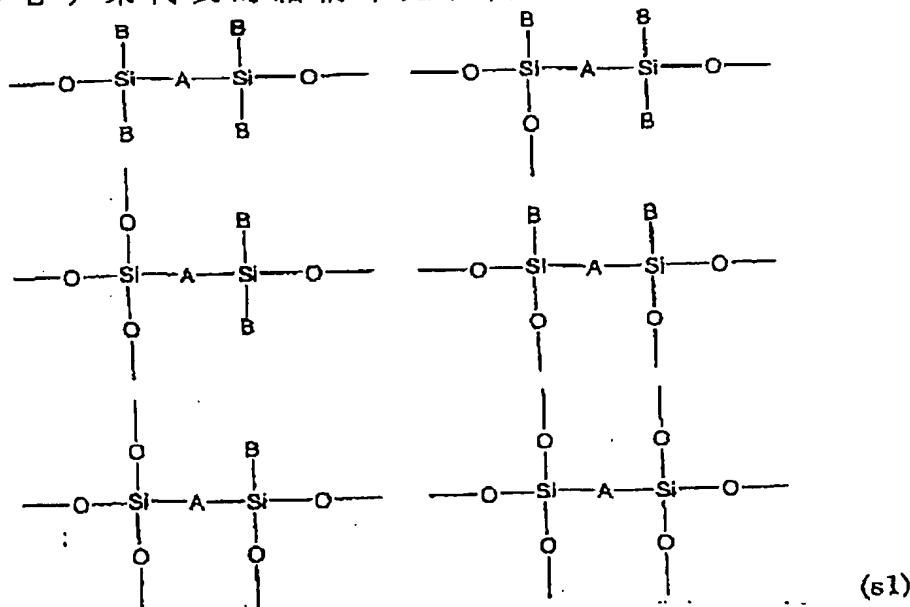
## 五、發明說明 ( 28 )

叉乙基叉基團。

本發明之第三種傳送電洞之聚合物，係第二種傳送電洞之聚合物，而它含有一種以上的以上面的通式 ( 1 2 ) 來代表的基團，以根據除去前述的基團中所含有的矽原子以外，屬於前述的傳送電洞之聚合物之矽原子總數 1 0 m o l % 至 1 5 0 m o l % 的份量，而羥基基團之含量係低於 1 0 m o l % ，以低於 5 m o l 為宜，而以低於 1 m o l % 更合宜，該含量係根據除去前述的基團中所含之矽原子以外，屬於前述的傳送電洞之聚合物之矽原子總數。

本發明之第三種傳送電洞之聚合物，在耐久性方面已經改良。

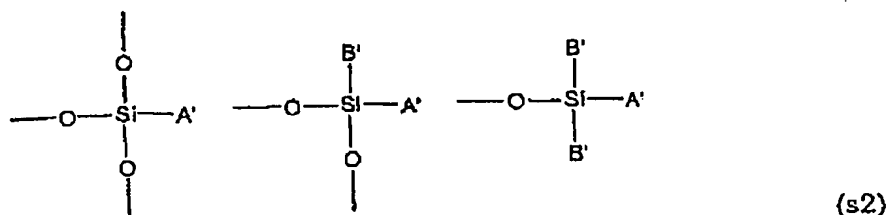
在第二種傳送電洞之聚合物或第三種傳送電洞之聚合物中所含有的結構單元之實例，包括以下面的通式 ( S 1 ) 與 ( S 2 ) 來代表的結構單元在內。





# 五、發明說明(29)

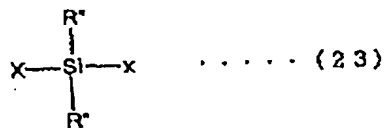
在化學式中，A 代表以通式(5)來代表的重複結構單元中的芳香胺基團。B 代表在通式(5)中R<sub>8</sub>至R<sub>11</sub>的任何一者，或代表以通式(12)來代表的基團。



在化學式中，A' 代表以通式(10)來代表的重複結構單元中的芳香胺基團。B' 代表通式(10)中的R<sub>10</sub>或R<sub>20</sub>，或以通式(12)來代表的基團。

製造本發明之第一種傳送電洞之聚合物之方法，其特徵在於水解及縮合一種以上的以上面的通式(14)來代表的矽烷化合物，而其實例包括：在酸性或鹼性的條件下，在有溶劑的存在，或無溶劑的存在下，水解及縮合的方法。

水解並縮合藉由混合以上面的通式(14)來代表的矽烷化合物，與一種以上的以下面的通式(23)來代表的矽烷化合物而得之混合物。



其中X代表鹵素原子及具有1至6個碳原子之烷氧基；而R''代表具有1至12個碳原子之烷基或芳基，它可以是

FREE

## 五、發明說明 (30)

相同的，或者可以是不同的。

就水解的條件而言，鹼性的條件是較合宜的。用來提供鹼性條件之鹼未被特別限定，而且可以使用無機鹼與有機鹼。在這些鹼中，有機鹼特別合宜。溶劑可以是能溶解上述矽烷化合物之任何一種溶劑，並且合宜的是具有高度極性的有機溶劑，諸如醚溶劑、胺溶劑等。亦可以使用二種以上溶劑所混合的溶劑。反應的溫度一般是在 0 至 150 °C 的範圍，以 40 至 100 °C 為宜。

反應的時間，取決於被水解與縮合的矽烷化合物，一般而言是 30 分鐘至 100 小時。

在通式 (14) 中，X 係鹵素原子，或具有 1 至 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基，以鹵素原子或具有 1 至 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基為宜，而以鹵素原子或具有 1 至 3 個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基更為合宜。

X 之特例，包括鹵素原子，諸如：碘、溴、氯、氟等；及烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊丁氧基、己丁氧基、庚丁氧基、辛丁氧基等。

在通式 (14) 中， $R_1$ 、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$  與  $Ar_3$  合宜的基團與其特例，與在通式 (1) 中的  $R_1$ 、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$  與  $Ar_3$  合宜的基團與其特例相同，並且在  $Ar_1$  與  $Ar_2$  之間，或  $Ar_1$  與  $Ar_3$  之間，或  $Ar_2$  與  $Ar_3$  之間形成環。

合成以上面的通式 (14) 來代表的矽烷化合物之方

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

## 五、發明說明 ( 31 )

法未被明確限定，而其特例包括：藉由烷基鹵矽烷、烷基烷氧基矽烷或烷基鹵烷氧基矽烷化合物，以及有機化合物之格利雅試劑或鋰試劑之間的複分解反應來獲得矽烷化合物之方法。

製造本發明之第二種傳送電洞之聚合物之方法，其特徵在於水解及縮合一種以上的以上面的通式 ( 1 5 ) 來代表的矽烷化合物，或一種以上的以上面的通式 ( 1 5 ) 與一種以上的以上面的通式 ( 1 6 ) 來代表的矽烷化合物之混合物，而其特例包括：在酸性或鹼性的條件下，在有溶劑的存在，或無溶劑的存在下，水解及縮合之方法。

以通式 ( 1 5 ) 來代表的矽烷化合物，或以通式 ( 1 5 ) 來代表的矽烷化合物之混合物，以及以上面的通式 ( 1 6 ) 來代表的矽烷化合物，可在除上述的矽烷化合物以外，具有烷氧基或鹵素原子之矽烷化合物的存在下水解及縮合。

就水解的條件而言，合宜的是鹼性的條件。用來產生鹼性條件的鹼並未明確地加以限定，可以使用無機鹼與有機鹼。在這些鹼之中，有機鹼特別合宜。有機鹼之實例，包括：二乙胺、三乙胺、丁胺、二丁胺、三丁胺及吡啶。溶劑可以是能溶解上述矽烷化合物的任何一種溶劑，而以具有高度極性的有機溶劑為宜，諸如醚溶劑、胺溶劑等。亦可以使用二種以上溶劑的混合物。反應的溫度，一般是在 0 至 1 5 0 °C 的範圍，以 4 0 至 1 0 0 °C 為宜。反應的時間，取決於受水解及縮合的矽烷化合物，一般而言是 3

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 (32)

30分鐘至100小時。

在通式 (15) 中， $R_{30}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$  與  $R_{33}$  各為鹵素原子，具有1-20個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，具有3-20個碳原子之環烷基，具有6-30個碳原子之芳基，或具有7-32個碳原子之芳烷基，以鹵素原子，具有1-10個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，或具有3-10個碳原子之環烷基為宜，而以鹵素原子，具有1-6個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基更為合宜。

$R_{30}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$  與  $R_{33}$  之特例，各包括：鹵素原子，諸如碘、溴、氯與氟；烷基基團，諸如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、己基、庚基、辛基等；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等；環烷基基團，諸如環丙基、環丁基、環戊基、環己基；芳基基團，諸如被甲基、乙基及丙基取代的苯基、萘基、蒽基、聯苯基；芳烷基基團，諸如可被甲基、乙基及丙基取代的苄基，苯乙基等。

在通式 (15) 中， $R_{28}$  與  $R_{29}$  各為鹵素原子，或具有1-20個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基，以鹵素原子，或具有1-10個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基為宜，而以鹵素原子，或具有1-3個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基更為合宜。

(請先閱讀背面之注意事項再填此頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 (33)

$R_{28}$  與  $R_{29}$  之特例，各包括：鹵素原子，諸如碘、溴、氯與氟；及烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等。

在通式 (15) 中， $A_{r25}$  與  $A_{r27}$  合宜的基團及其特例，與在通式 (5) 中的  $A_{r9}$  或在通式 (10) 中的  $A_{r19}$  的基團及特例相同。

在通式 (15) 中， $A_{r25}$  與  $A_{r27}$  合宜的基團及其特例，與在通式 (5) 中  $A_{r19}$  的基團及特例相同。在  $A_{r25}$  與  $A_{r26}$  之間，或  $A_{r25}$  與  $A_{r27}$  之間，或  $A_{r26}$  與  $A_{r27}$  之間形成環。

在通式 (16) 中， $R_{35}$  與  $R_{36}$  各為鹵素原子，具有 1 - 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，具有 3 - 20 個碳原子之環烷基，具有 6 - 30 個碳原子之芳基，或具有 7 - 32 個碳原子之芳烷基，以鹵素原子，具有 1 - 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基，或具有 3 - 10 個碳原子之環烷基為宜，而以鹵素原子，具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或烷氧基更為合宜。

$R_{35}$  與  $R_{36}$  之特例，各包括：鹵素原子，諸如碘、溴、氯、氟；烷基基團，諸如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、己基、庚基、辛基等；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等；環烷基基團，諸如環丙基、環丁基、

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明 (34)

環戊基、環己基等；芳基基團，諸如被甲基、乙基及丙基取代的苯基、萘基、蔥基、聯苯基等；以及芳烷基基團，諸如可被甲基、乙基與丙基取代的苄基、苯乙基等。

在通式 (16) 中， $R_{3,4}$  係鹵素原子，或具有 1 - 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基，以鹵素原子或具有 1 - 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基為宜，而以鹵素原子，或具有 1 - 3 個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基更為合宜。

$R_{3,4}$  之特例，包括：鹵素原子，諸如碘、溴、氯及氟；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等。

在通式 (16) 中， $Ar_{2,8}$  芳基叉基團係具有 6 - 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 - 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或萘撐基團更為合宜。

$Ar_{2,8}$  芳基叉基團之特例，包括：被甲基、乙基與丙基取代的苯撐、萘撐、亞蔥基等。

在通式 (16) 中， $Ar_{2,8}$  可以是以通式 (17) 來代表的芳基叉乙基叉基團。

在通式 (17) 中， $Ar_{3,1}$  與  $Ar_{3,2}$  各為具有 6 - 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 - 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明 (35)

鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐基團更為合宜。

$A r_{31}$  與  $A r_{32}$  之特例，各包括：被甲基、乙基與丙基取代的苯撐、萘撐、亞蒽基等。

在通式 (17) 中， $R_{37}$  與  $R_{38}$  各為氫原子，具有 1 - 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 - 20 個碳原子之環烷基，具有 6 - 30 個碳原子之芳基，或具有 7 - 32 個碳原子之芳烷基，以氫原子，具有 1 - 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 - 10 個碳原子之環烷基，具有 6 - 20 個碳原子之芳基，或具有 7 - 22 個碳原子之芳烷基為宜，而以氫原子，具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團更為合宜。

$R_{37}$  與  $R_{38}$  之特例，各包括：氫原子、甲基、乙基、丙基，與被甲基，乙基與丙基取代的苯基基團。

在通式 (16) 中， $A r_{29}$  與  $A r_{30}$  芳基基團各為具有 6 - 30 個碳原子之芳基，以具有 6 - 20 個碳原子之芳基為宜，而以被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或萘基更為合宜。

$A r_{29}$  與  $A r_{30}$  芳基之特例，各包括：被甲基、乙基及丙基取代的苯基、萘基、蒽基等。

在通式 (16) 中， $A r_{29}$  與  $A r_{30}$  可以是以通式 (

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明 (36)

18) 來代表的芳香胺基團。

在通式 (18) 中， $Ar_{33}$  係具有 6 - 30 個碳原子之芳基叉基團，以具有 6 - 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐或聯苯撐基團更為合宜。

$Ar_{33}$  之特例，包括：被甲基、乙基與丙基取代的苯撐，蔡撐、亞蒽基、聯苯撐基團等。

在通式 (18) 中， $R_{39}$  與  $R_{40}$  各包括：具有 1 - 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 - 20 個碳原子之環烷基，具有 6 - 30 個碳原子之芳基，與具有 7 - 32 個碳原子之芳烷基，以具有 1 - 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 - 10 個碳原子之環烷基，具有 6 - 20 個碳原子之芳基，與具有 7 - 22 個碳原子之芳烷基為宜，而以可被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯基或蔡基更為合宜。

$R_{39}$  與  $R_{40}$  之特例，各包括：被甲基、乙基與丙基取代的苯基、蔡基、蒽基、聯苯基等。

在通式 (18) 中，在  $Ar_{33}$  與  $R_{39}$  之間，或  $Ar_{33}$  與  $R_{40}$  之間，或  $R_{39}$  或  $R_{40}$  之間形成環。

在通式 (16) 中， $Ar_{29}$  與  $Ar_{30}$  可以是以通式 (19) 來代表的芳基叉乙基叉基團。

在通式 (19) 中， $Ar_{34}$  係具有 6 - 30 個碳原子

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製



### 五、發明說明 ( 37 )

之芳基叉基團，以具有 6 - 20 個碳原子之芳基叉基團為宜，而以被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯撐基團更為合宜。

A r<sub>34</sub>之特例，包括：被甲基、乙基與丙基取代的苯撐、萘撐、亞蒽基基團等。

在通式 ( 19 ) 中，A r<sub>34</sub>係具有 6 - 30 個碳原子之芳基，以具有 6 - 20 個碳原子之芳基為宜，而以被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團更為合宜。

A r<sub>34</sub>之特例，包括：被甲基、乙基與丙基取代的苯基、萘基、蒽基等。

在通式 ( 19 ) 中，R<sub>41</sub>與R<sub>42</sub>各包括：氫原子，具有 1 - 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 - 20 個碳原子之環烷基，具有 6 - 30 個碳原子之芳基，與具有 7 - 32 個碳原子之芳烷基，以氫原子，具有 1 - 10 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，具有 3 - 10 個碳原子之環烷基，具有 6 - 20 個碳原子之芳基，與具有 7 - 22 個碳原子之芳烷基為宜，而以氫原子，具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，被具有 1 - 6 個碳原子之直鏈或支鏈的烷基，或具有 3 - 6 個碳原子之環烷基取代的苯基基團更為合宜。

R<sub>41</sub>與R<sub>42</sub>之特例，各包括：氫原子、甲基、乙基與丙基，或被甲基、乙基與丙基取代的苯基基團。

在通式 ( 16 ) 中，在 A r<sub>28</sub>與 A r<sub>29</sub>之間，或

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 38 )

$A r_{28}$  與  $A r_{30}$  之間，或  $A r_{29}$  與  $A r_{30}$  之間形成環。

合成以上述的通式 ( 15 ) 與 ( 16 ) 來代表的矽烷化合物之方法，並未明確地加以限制，而其特例包括：藉由烷基鹵矽烷，烷基烷氧基矽烷或烷基鹵烷氧基矽烷化合物，以及有機化合物之格利雅試劑或鋰試劑之間的複分解反應來獲得矽烷化合物之方法。

製造本發明之第二種或第三種傳送電洞之聚合物，其特徵在於把以通式 ( 20 ) 來代表的矽烷化合物與利用上文的製造第二種傳送電洞之聚合物之方法所製得的傳送電洞之聚合物一起反應。彼之特例，包括在酸性條件或鹼性的條件下，在有溶劑存在，或與溶劑的存在下，行水解與縮合。

就水解的條件而論，以鹼性的條件為宜。用來造成鹼性條件的鹼，並沒有明確地加以限制，而可以使用無機鹼與有機鹼。在這些鹼之中，以有機鹼特別合宜。有機鹼之實例，包括二乙胺、三乙胺、丁胺、二丁胺、三丁胺及吡啶。溶劑可以是能溶解上述的矽烷化合物的任何一種溶劑，而以具有高度極性的有機溶劑為宜，諸如醚溶劑，胺溶劑等。亦可以使用二種以上溶劑的混合物。

反應的溫度一般是在 0 至 150 °C 的範圍，以最低不低於 20 °C，而最高不超過 100 °C 為宜，而以最低不低於 40 °C，而最高不超過 80 °C 更為合宜。

在通式 ( 20 ) 中，X 係鹵素原子，羥基或具有 1 - 20 個碳原子之直鏈或支鏈的烷氧基，以鹵素原子、羥基

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(39)

為宜，而以鹵素原子更為合宜。

X之特例包括：鹵素原子，諸如碘、溴、氯及氟；烷氧基基團，諸如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、仲丁氧基、叔丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基等。

在通式(20)中， $R_{25}$ 、 $R_{26}$ 、 $R_{27}$ 合宜的基團及其特例，包括在通式(12)中的 $R_{25}$ 、 $R_{26}$ 及 $R_{27}$ 的合宜的基團及其特例。

合成以上文的通式(20)來代表的矽烷化合物的方法，並未明確地加以限制，而其特例包括：藉由烷基鹵矽烷，烷基烷氧基矽烷或烷基鹵烷氧基矽烷化合物，以及有機化合物之格利雅試劑或鋰試劑之間的複分解反應，來獲得矽烷化合物之方法。

本發明之有機電發光元件，將於後文中加以敘述。

本發明之有機電發光元件，其特徵在於：〔7〕有機電發光元件，它含有陰極與陽極之電極對，其中至少有一者是透明的，或是半透明的，並且在電極之間形成一層以上的有機質，其中有機質層含有第一種傳送電洞之聚合物〔1〕，第二種傳送電洞之聚合物〔2〕，或第三種傳送電洞之聚合物〔3〕。

本發明之有機電發光元件，其特徵在於：〔8〕有機電發光元件，它含有陰極與陽極之電極對，其中至少有一者是透明的，或是半透明的，並且在電極之間形成發光層，其中發光層含有第一種傳送電洞之聚合物〔1〕，第二

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

# 五、發明說明 ( 40 )

91. 4. 19

種傳送電洞之聚合物〔2〕，或第三種傳送電洞之聚合物〔3〕。

本發明之有機電發光元件，其特徵在於：〔9〕有機電發光元件，它含有陰極與陽極之電極對，其中至少有一者是透明的，或是半透明的，並且在電極之間形成發光層，其中傳送電洞層，它含有第一種傳送電洞之聚合物〔1〕，第二種傳送電洞之聚合物〔2〕，或第三種傳送電洞之聚合物〔3〕，就近供應給介於陽極與發光層之間的發光層。

本發明之有機電發光元件，其特徵在於：〔10〕在第〔8〕項或第〔9〕項中所述的有機電發光元件，其中含有傳送電洞之物質的傳送電子層，就近供應給介於陰極與發光層之間的發光層。

本發明之有機電發光元件，其特徵在於：〔11〕在有機電發光元件之任何一種中所述的有機電發光元件，其中發光層含有發光聚合物，該發光聚合物含有根據重複結構單元總數50mol%比例之以下面的通式(24)來代表的重複結構單元，並且擁有 $10^3$ 至 $10^7$ 之聚苯乙烯對比數平均分子量。



其中 $A_r$ 代表參與共價鍵的芳基叉基團或具有4至20個碳原子之雜環化合物基團；而R與 $R'$ 各代表選自下列基團的基團：氫原子，具有1至20個碳原子之烷基，具有6至20個碳原子之芳基，具有4至20個碳原子之雜環

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(41)

化合物與氬基。

本發明之有機電發光元件之結構，並沒有明確地加以限制，而且可以是在一對陰極與陽極之電極對之間，具有一層以上的有機層之任何有機電發光元件，其中至少有一個是透明的，或者是半透明的，其中有機層含有上述的傳送電洞之聚合物。本發明之有機電發光元件結構之合宜的實例，包括：發光層含有傳送電洞之聚合物者，藉由使發光層在含有傳送電洞之聚合物之傳送電洞層上形成層，並在兩個表面上提供一對電極而獲得者，以及藉由使含有傳送電子層之物質之傳送電子層在發光層與陰極之間形成層而獲得者。可以個別使用單層或多層的發光層與傳送電荷層。

以下的傳送電荷物質，亦即傳送電子物質或傳送電洞物質，可以存在於傳送電洞層中，除非傳送電洞之聚合物的運作受到了抑制。當其他的傳送電洞之物質與傳送電洞之聚合物混合時，其份量最多不超過根據傳送電洞之聚合物的重量百分率之100%，以最多不超過40%為宜，而以最多不超過20%最為合宜。當混合傳送電子之物質時，可以考慮到發光效能而適切地選擇混合比。

上述的傳送電荷的物質，它在本發明之有機電發光元件中被單獨地使用，或是以結合的形式被使用，並沒有明確地加以限制，並且可以使用已知的物質。傳送電洞之物質的實例，包括：吡啶衍生物、芳胺衍生物、芪衍生物，三苯二胺衍生物等；而傳送電子之物質之實例，包括：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明(42)

噁二唑衍生物、蔥醌二甲烷及其衍生物，苯醌及其衍生物，萘醌及其衍生物，蔥醌及其衍生物、四氘蔥醌二甲烷及其衍生物，芴酮衍生物、二苯二氘乙烯及其衍生物、二酚醌衍生物、8-羥基喹啉之金屬絡合體及其衍生物等。

彼之特例，包括：在 JP-A-63-70257，JP-A-63-175860，JP-A-2-135359，JP-A-2-135361，JP-A-2-209988，JP-A-3-37992 與 JP-A-3-152184 中敘述的實例。在這些實例中，傳送電洞之物質合宜地包括了三苯二胺衍生物在內，而傳送電子之物質合宜地包括了噁二唑衍生物，苯醌及其衍生物，蔥醌及其衍生物，以及 8-羥基喹啉之金屬絡合體及其衍生物在內。較合宜的是傳送電洞之物質包括了 4,4'-雙(N(3-甲基)-N-苯基氨基)聯苯基，而傳送電子之物質包括了 2-(4-聯苯基)-5-(4-叔丁基苯基)-1,3,4-噁二唑、苯醌、蔥醌與三(8-喹啉醇)鋁。

在這些實例中，可以使用傳送電子之物質之化合物及／或傳送電洞之物質之化合物。這些傳送電子之物質與傳送電洞之物質可以單獨使用，或以結合的形式來使用。

當傳送電洞層就近供應給發光層，而傳送電子層被進一步供應給在發光層與陰極之間的發光層時，藉由利用上述的傳送電子之物質可以形成傳送電子層。當在傳送電洞層與陽極之間供給第二種傳送電洞層時，藉由利用上述的

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(43)

傳送電洞之物質可以形成第二種傳送電洞層。

當上述的傳送電荷之物質與發光物，以相結合的形式來使用時，所使用的傳送電荷之物質之份量，隨待用的化合物之種類而改變。因此，可以適切地決定出份量，除非足夠的薄膜成型性質與發光特性受到了抑制。傳送電荷之物質的份量一般是1至40%，而以2至30%為宜，此重量百分率係依據發光物之重量。

大家所熟知的發光物，可以在本發明之有機電發光元件之發光層中加以使用者，並未明確地加以限制。就低分子量化合物而論，舉例來說，可以使用苯衍生物，蔥及其衍生物、茈及其衍生物、聚甲炔染料、氧雜蔥染料、香豆素染料及花青染料；及8-羥喹啉之金屬絡合體及其衍生物、芳香胺、四苯基環戊二烯及其衍生物，以及四苯基丁二烯及其衍生物。彼之特例包括大家所熟知的發光物，諸如JA-A-57-51781與JP-A-59-194393中所述的發光物。

就聚合的化合物而言，舉例來說，可以與下列物質結合使用者發光聚合物，諸如聚對苯烯及其衍生物、聚（對苯烯乙烯撐）及其衍生物，聚芴及其衍生物，聚喹啉及其衍生物、聚喹噁啉及其衍生物等。彼之特例包括眾所熟知的發光聚合物，諸如JP-A-5-202355與JP-A-5-320635，JP-A-7-97569，JP-A-7-147190，JP-A-7-278276與JP-A-7-300580中所述之特

（請先閱讀背面之注意事項再填此頁）

訂

## 五、發明說明(44)

例。

就本發明之有機電發光元件中所含的發光材料而言，以發光聚合物為宜。發光聚合物之實例，包括聚芳基叉乙烯撐及其衍生物，它含有以上文的通式(24)來代表的重複單元，該重複單元以最低不低於50mol%的比例存在著，而此百分率係根據重複結構單元的總數，而且該聚合物擁有 $10^3$ 至 $10^7$ 的減低聚苯乙烯數平均分子量。由於受重複單元之結構決定之故，以上述的通式(24)來代表的重複單元之比例，以最低不低於根據重複結構單元的總數之百分率70mol%為宜。發光聚合物可含有二價的芳香化合物基團或其衍生物，二價的雜環化合物或其衍生物，或以結合的形式來利用它們充作以上述的通式(24)來代表的重複單元所獲得的基團。以上述的通式(24)來代表的重複單元可以鍵接在非共軛單元中，該非共軛單元擁有乙醚基團、酯基團、醯胺基團、亞胺基團等。或者，在重複單元中可以有非共軛的部份。

當發光材料係含有通式(24)之重複單元之發光聚合物時，則通式(24)之 $A_r$ 包括：參與共軛鍵之芳基叉或具有4至20個碳原子之雜環化合物基團。

$A_r$ 之實例係詳述於JP-10-46138之中。其中，合宜的是苯撐基團、經取代的苯撐基團、聯苯撐基團，經取代的聯苯撐基團、萘二基基團，經取代的萘二基基團、蒽-9,10-二基基團，經取代的蒽-9,10-二基基團，吡啶-2,5-二基基團，噻吩撐基團，或

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂



## 五、發明說明 (45)

經取代的噁噁撐基團。更合宜的基團是苯撐基團、聯苯撐基團、蔡二基基團、吡啶-2,5-二基及噁噁撐基團。

當通式 (24) 之 R 與 R' 係除氫與氫基以外的基團時，則 R 與 R' 之實例包括具有 1 至 20 個碳原子之烷基，諸如甲基、乙基、丙基、丁基、戊基、己基、庚基、辛基、癸基、十二基等，以甲基、乙基、戊基、己基、庚基與辛基為宜。

R 與 R' 之實例，包括：芳基基團，諸如苯基，4-C<sub>1-12</sub> 烷氧苯基 (C<sub>1-12</sub> 表示 1 至 12 個碳原子，相同的規則適用於相對應的下文)，4-C<sub>1-12</sub> 烷基苯基，1-蔡基，2-蔡基等。

就溶劑之溶解度看來，通式 (24) 之 Ar 以被下列基團所取代者為宜：具有 4 至 20 個碳原子之烷基、烷氧基或烷基代基團，具有 6 至 18 個碳原子之芳基或芳氧基基團，以及具有 4 至 14 個碳原子之雜環化合物。

取代基之實例如下。具有 4 至 20 個碳原子之烷基，包括：丁基、戊基、己基、庚基、辛基、癸基、十二基等，以戊基、己基、庚基及辛基為宜。

具有 4 至 20 個碳原子之烷氧基之實例，包括：丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基、癸氧基、十二烷氧基等，以戊氧基、己氧基、庚氧基及辛氧基。

烷基硫代基團之實例，包括：丁硫代基、戊硫代基、己硫代基、庚硫代基、辛硫代基、癸硫代基、十二烷基硫代基等，以戊硫代基、己硫代基、庚硫代基及辛硫代基為

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

## 五、發明說明 ( 46 )

宜。

芳基基團之實例，包括：苯基，4 - C<sub>1</sub>-<sub>12</sub> 烷氧苯基、4 - C<sub>1</sub>-<sub>12</sub> 烷苯基、1 - 萘基、2 - 萘基等。

芳氧基基團之實例，包括了苯氧基。雜環化合物基團之實例，包括：2 - 噻噁基、2 - 吡咯基、2 - 呋喃基、2 - , 3 - 或 4 - 吡啶基等。

以上取代基之數目隨發光聚合物之分子量及重複單元之結構而變化。爲了獲得具有高溶解度之發光聚合物，這些取代基之數目以分子量每 600 具有至少 1 個取代基爲宜。

合成發光聚合物之方法，並未明確地加以限制，而其實例包括在 JP - A - 5 - 202355 中所述之方法。

在本發明之有機電發光元件中使用的發光聚合物，可以是任意的成塊或接枝的共聚物，或是具有彼之中間構造之聚合物，例如具有成塊聚合物傾向之隨機共聚物。爲了獲得具有高螢光量子率的發光聚合物，具有成塊聚合物傾向之隨機共聚物，或成塊或接枝的共聚物要是較完美的隨機共聚物爲佳。

由於本發明之有機電發光元件利用薄膜來發光的緣故，我們使用了在固態時會發光的發光聚合物。

對發光聚合物而言，良好溶劑之實例包括：三氯甲烷、二氯甲烷、二氯乙烷、四氫呋喃、甲苯、二甲苯等。發光聚合物通常能被這些溶劑所溶解，以最低不低於 0.1 w t % 的形式溶解，雖然它會隨發光聚合物之結構或分子

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明 ( 47 )

量而變化。

在本發明之有機電發光元件中，所使用的發光聚合物之聚苯乙烯對比之分子量，以在  $10^3$  至  $10^7$  的範圍內為宜，而合宜的聚合度則取決於重複結構及其比例。從薄膜成型的性質看來，重複結構之總數，以在 4 至 1000 的範圍內為宜，而以在 5 至 3000 的範圍內較合宜，特別是在 10 至 200 的範圍內。

在把這些發光聚合物充作有機電發光元件之發光材料來使用的時候，由於純度對發光特性發揮影響力的緣故，俟合成之後，藉由再沈澱法將發光聚合物合宜地純化，利用層離法等方法加以分離。

其次，將對製作本發明之有機電發光元件的典型方法加以敘述。就由陰極與陽極所組成的透明或半透明之電極對而論，舉例來說，可以使用利用在透明的被作用物，諸如玻璃，透明塑膠等，的上面形成透明或半透明的電極而獲得的電極。

就陽極之材料而論，舉例來說，可以利用導電的金屬氧化物薄膜，半透明的金屬薄膜等。詳言之，就是使用銦-錫氧化物 (ITO)，氧化錫、氧化鋅、Au、Pt、Ag、Cu 等之薄膜。製造方法之實例，包括：真空積鍍法、濺鍍法、電鍍法等。

含有如傳送電洞之材料般的本發明之傳送電洞之聚合物之傳送電洞層，係在陽極上形成。形成含有本發明之傳送電洞之聚合物的傳送電洞層之方法的實例，包括：應用

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 (48)

含有傳送電洞之聚合物之傳送電洞物質的熔融物，溶液或混合溶液之方法，使用塗覆法，諸如旋轉塗覆法、澆鑄法、浸漬法、棒塗覆法、滾軋塗覆法等。

傳送電洞層之薄膜厚度，以  $0.5 \text{ nm}$  至  $10 \mu\text{m}$  的範圍內為宜，而以  $1 \text{ nm}$  至  $1 \mu\text{m}$  較合宜。為了利用提高電流密度來增強發光效能的目的，薄膜的厚度以  $10$  至  $80 \text{ nm}$  的範圍為宜。

然後，含有發光物質之發光層生成了。生成發光層之方法的實例，包括：塗覆法，諸如以這些物質的粉末形式來行真空積鍍的方法，利用旋轉塗覆法、澆鑄法、浸漬法、棒塗覆法或滾軋塗覆法等方法來應用這些物質之熔融物，溶液或混合溶液之方法。在使用低分子量化合物的情況下，以真空積鍍法為宜。在使用聚合物的化合物的情況下，以利用旋轉塗覆法、澆鑄法、浸漬法、棒塗覆法或滾軋塗覆法等方法來應用溶液或混合溶液之方法為宜。

發光層之薄膜厚度，以  $0.5 \text{ nm}$  至  $10 \mu\text{m}$  為宜，而以  $1 \text{ nm}$  至  $1 \mu\text{m}$  較合宜。為了藉由提高電流密度來增強發光效能，薄膜的厚度以  $10$  至  $500 \text{ nm}$  為宜。

當利用塗覆法使傳送電洞層之薄膜及／或發光層之薄膜生成時，合適的情況是在  $30$  至  $300^\circ\text{C}$  的溫度範圍內加熱使其乾燥，而以  $60$  至  $200^\circ\text{C}$  較合宜，在減壓或惰性氣氛下進行，以便傳送電洞層及／或發光層形成之後移除掉溶劑。

當傳送電子層進一步在發光層上形成層時，合宜的情

(請先閱讀背面之注意事項再填第本頁)

裝

訂

## 五、發明說明(49)

況是在藉由上述的薄膜成型法生成發光層之後，傳送電子層亦生成。

形成傳送電子層薄膜之方法，並未明確地加以限定，並且可以在粉末的形式下，利用真空積鍍法；俟溶解於溶液後，利用塗覆法，諸如旋轉塗覆法、澆濤法、浸漬法、棒塗覆法、滾軋塗覆法等；或俟把粘合劑樹脂與溶液或熔融狀態之傳送電子物質混合後，利用塗覆法，諸如旋轉塗覆法、澆鑄法、浸漬法、棒塗覆法、滾軸塗覆法等而為之。

待混合的粘合劑樹脂，並沒有明確地加以限定，但以不會抑制電子的傳送為宜。以對可見光之吸收不強者為適合使用的。

彼之實例，包括聚(N-乙基基吡啶)及其衍生物，聚苯胺及其衍生物，聚噻吩及其衍生物，聚(對苯撐乙烯撐)及其衍生物，聚(2,5-噻吩撐乙烯撐)及其衍生物，多碳酸鹽、聚丙烯酸酯、聚丙烯酸甲酯、聚甲基丙烯酸甲酯、聚苯乙烯、聚氯乙烯、聚矽氧烷等。當使用聚合的化合物時，以利用塗覆法為宜，因為可快速形成薄膜。

傳送電子層之薄膜厚度，必須是能不形成針孔的厚度。當薄膜的厚度太大時，元件之阻力提高，而需要高的驅動電壓，這是很不利的。於是，傳送電子層之薄膜厚度，係以0.5 mm至10 μm為宜，以1 nm至1 μm較合宜，而以5至200 nm特別合宜。

之後，電極即在發光層或傳送電子層上面形成。此電

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明 ( 50 )

91.4.19

極充當電子注射陰極。該物質並沒有明確地加以限制，但以具有小的工作函數之物質為宜。舉例而言，可以使用 Al、In、Mg、Ca、Li、Mg-Ag 合金，In-Ag 合金，Mg-In 合金，Mg-Al 合金，Mg-Li 合金，Al-Li 合金，石墨薄膜等。就製造陰極的方法而論，可以利用真空積鍍法，濺鍍法等。

## 實施例

以下的實施例，進一步詳細地舉例說明本發明，但並非想要去限定本發明之範圍。

在以下的實施例中，聚合物之分子量，例如聚苯乙烯對比數平均分子量及聚苯乙烯對比重量平均分子量，係藉由凝膠滲透層離法 (Wasters Co., Maxima-820) 來量測。結構的分析係藉由使用核磁共振吸收光譜 ( $^1\text{H}$ ,  $^{13}\text{C}$ -NMR, Bruker 公司出品, Model AC200P), 質譜 (FD-MS, JEOL 股份有限公司製造之質量分析儀, Model JMS-SX102) 及紅外線吸收光譜 (IR, Nippon BIORAD Co. 出品) 來進行。

## 參考例 1

< 乙基 ( 4 - ( 2' - ( 4'' - ( N, N - 二苯氨基 ) 苯基 ) 乙烯基 ) 苯基 ) 二氯矽烷之合成 >

在乾的氬氣氛下，滴狀地把正丁基鋰 / 正己烷加至上述的 4 - ( 2' - ( 4'' - ( N, N - 二苯基氨基 ) 苯基

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

修正  
補充  
91.4.13

# 五、發明說明 ( 51 )

) 乙烯基) 溴苯之乾四氫呋喃溶液中，而製得 4 - ( 2 - ( 4 " - ( N , N - 二苯基氨基 ) 苯基 ) 乙烯基 ) 苯基鋰。

在乾的氬氣氛下，於 - 7 8 °C 下，滴狀地把上述的 4 - ( 2 - ( 4 " - ( N , N - 二苯基氨基 ) 苯基 ) 乙烯基 ) 苯基鋰加至蒸餾的乙基三氯矽烷 ( 3 . 3 g ) 之乾四氫呋喃溶液中。俟於 - 7 8 °C 攪拌 1 小時後，使溫度回昇至室溫。俟蒸餾掉過量的乙基三氯矽烷與溶劑之後，加入乾甲苯，並於乾的氬氣氛下利用玻璃濾器來去除鋰鹽。利用生成的反應生成物之核磁共振光譜 ( <sup>1</sup> H - N M R ) 及甲氧基化衍生物 [ 乙基 ( 4 - ( 2 - ( 4 " - ( N , N - 二苯基氨基 ) 苯基 ) 乙烯基 ) 苯基 ) 二甲氧基矽烷 ] 之質譜 ( F D - M S ) 來確定乙基 ( 4 - ( 2 - ( 4 " - ( N , N - 二苯基氨基 ) 苯基 ) 乙烯基 ) 苯基 ) 二氯矽烷的生成。

<sup>1</sup> H - N M R : 1 . 1 5 [ t ] ( 乙基基團 ) ,  
1 . 3 4 [ g ] ( 乙基基團 ) , 7 . 0 - 7 . 7 [ m ] ( 芳香基團 )

F D - M S : m / z 4 6 5

## 實施例 1

### < 傳送電洞聚合物 1 之合成 >

於乙基 ( 4 - ( 2 - ( 4 " - ( N , N - 二苯基氨基 ) 苯基 ) 乙烯基 ) 苯基 ) 二氯矽烷中，加入 2 m l 三乙

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

修補  
年 月 日

五、發明說明 ( 52 )

胺，跟著加入 3 m l 的三乙胺與甲醇之混合溶液。俟蒸除掉溶劑之後，把混合物溶於 5 0 m l 甲苯中，利用分液漏斗，以 1 N 氫氧化鉀水溶液洗濯該溶液。然後，分離出甲苯層，蒸除掉溶劑。以乙醇／四氫呋喃行再沈澱法來純化生成的固體，得到白色固體 2 . 7 g 。在下文中，將此白色固體稱作“傳送電洞聚合物 1”。

在生成的傳送電洞聚合物 1 之紅外線吸收光譜中，來源於矽氧烷鍵之寬譜訊號於  $1100\text{ cm}^{-1}$  與  $800\text{ cm}^{-1}$  處附近可以看得到。在核磁共振吸收光譜 ( $^1\text{H-NMR}$ ) 中，鍵接在矽原子上的乙基基團之寬譜訊號在  $0.7 - 1.0\text{ ppm}$  附近可以看到，而芳香性質子之寬譜訊號在  $6.4 - 7.6\text{ ppm}$  附近可以看到，這些訊號之積分強度比為  $1 : 4$  左右。因此，我們確定  $4 - (2 - (4 - (N, N - \text{二苯基氨基})\text{苯基})\text{乙烯基})\text{苯基}$  基團，它併入生成的聚合物中作為重複單元的一部份。傳送電洞聚合物 1 之分子量，係藉由凝膠滲透層離法來量測。結果，聚苯乙烯對比重量平均分子量為  $1.3 \times 10^4$ ，而聚苯乙烯對比數平均分子量為  $7.1 \times 10^3$ 。

參考例 2

$< N, N - \text{二苯基} - N, N' - \text{雙}(3 - \text{甲基苯基}) - 1, 1' - \text{聯苯基} - 4, 4' - \text{二胺之溴化} >$

以  $N - \text{溴琥珀醯亞胺}$  之  $N, N - \text{二甲基甲醯胺}$  溶液溴化  $N, N - \text{二苯基} - N, N' - \text{雙}(3 - \text{甲基苯基}) -$

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線



## 五、發明說明 ( 58 )

1, 1' - 聯苯基 - 4, 4' - 二胺。經由質譜來確定 N, N - 二苯基 - N', N' - 雙 (3'' - 甲基苯基) - 1, 1' - 聯苯基 - 4, 4' - 二胺之二溴衍生物之生成。

## &lt; 矽烷化合物 1 之合成 &gt;

在與參考例 1 中所述之方法相同的方法中，藉由於 - 78 °C，在乾燥氬氣氛下，利用正丁基鋰 / 正己烷溶液之乾四氫呋喃溶液，鋰氧化 N, N - 二苯基 - N', N' - 雙 (3'' - 甲基苯基) - 1, 1' - 聯苯基 - 4, 4' - 二胺之二溴衍生物，然後與氯三乙氧基矽烷反應。

藉由生成的生成物之質譜 (FD - MS) 與核磁共振光譜 (<sup>1</sup>H - NMR) 來確定，N, N - 二苯基 - N', N' - 雙 (3'' - 甲基苯基) - 1, 1' - 聯苯基 - 4, 4' - 二胺之三乙氧基矽烷基衍生物與雙 (三乙氧基矽烷基) 衍生物之生成。在下文中，將此衍生物稱作「矽烷化合物 1」。

<sup>1</sup>H - NMR : 1.26 [t] (乙氧基基團), 2.26 [s] (甲基基團), 2.39 [s] (甲基基團), 3.88 [q] (乙氧基基團), 6.8 - 7.6 [m] (芳香基團)

FD - MS : m/z 678 (三乙氧基矽烷基衍生物), 840 (雙 (三乙氧基矽烷基) 衍生物)

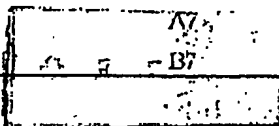
## 實施例 2

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

續

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製



## 五、發明說明 ( 54 )

### < 傳送電洞聚合物 2 之合成 >

於矽烷化合物 1 (約 4 g 左右) 之四氫呋喃溶液中，加入三乙胺  $200 \mu\text{l}$  與水  $100 \mu\text{l}$ ，並加以攪拌。俟蒸除掉溶劑之後，藉由以四氫呋喃 / 2-丙醇行再沈澱法純化該混合物，獲得白色固體 0.90 g。在下文中，將此白色固體稱作「傳送電洞聚合物 2」。

在生成的傳送電洞聚合物 2 之紅外線吸收光譜中，來源於矽氧烷鍵之寬譜訊號於  $1100 \text{ cm}^{-1}$  與  $800 \text{ cm}^{-1}$  處附近可以看到。在核磁共振吸收光譜 ( $^1\text{H-NMR}$ ) 中，苯環上的甲基基團之寬譜訊號在 1.8 - 2.4 ppm 附近可以看到，而芳香性質子之寬譜訊號在 6.2 - 7.6 ppm 附近可以看到。因此，我們確定 N，N'-二苯基-N，N'-雙(3'-甲基苯基)-1，1'-聯苯基-4，4'-二胺基團，併入生成的聚合物中，作為重複單元的一部份。傳送電洞聚合物之分子量，係藉由凝膠滲透層離法來量測。結果，聚苯乙烯對比重量平均分子量為  $4.8 \times 10^5$ ，而聚苯乙烯對比數平均分子量為  $9.2 \times 10^3$ 。

### 參考例 3

< N，N，N'，N'-四苯基-1，1'-聯苯基-4，4'-二胺之溴化 >

在與參考例 2 中所述之方法相同的方法中，N，N，N'，N'-四苯基-1，1'-聯苯基-4，4'-二

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

終

## 五、發明說明 ( 55 )

胺被溴化。

91.4.13

< 矽烷化合物 2 之合成 >

在與參考例 2 中所述之方法相同的方法中，利用在  $-78^{\circ}\text{C}$ ，乾燥氬氣氛下，使用正丁基鋰／正己烷溶液之乾四氫呋喃溶液鋰氧化上述的二溴衍生物，然後與氯三乙氧基矽烷反應。在下文中，將該生成物稱作“矽烷化合物 2”。

實施例 3

< 傳送電洞聚合物 3 之合成 >

於矽烷化合物 2 ( 0.5 g ) 之甲苯溶液中，加入四氫呋喃  $50\ \mu\text{l}$  與水  $10\ \mu\text{l}$ ，並加以攪拌。俟蒸除掉溶劑之後，利用四氫呋喃／2-丙醇行再沈澱法純化該混合物，獲得白色固體 0.10 g。在下文中，將此白色固體稱作“傳送電洞聚合物 3”。

在產生的傳送電洞聚合物 3 之紅外線吸收光譜中，來源於矽氧烷鍵之寬譜訊號於  $1100\ \text{cm}^{-1}$  與  $800\ \text{cm}^{-1}$  處附近可以看到。在核磁共振吸收光譜 ( $^1\text{H-NMR}$ ) 中，芳香質子之寬譜訊號於 6.4 - 7.6 ppm 附近可看到。因此，我們確定 N, N, N', N' - 四苯基 - 1, 1' - 聯苯基 - 4, 4' - 二胺基團，它併入產生的聚合物中作為重複單元的一部份。傳送電洞聚合物 3 之分子量係藉由凝膠滲透層離法來量測。結果，聚

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 56 )

苯乙烯對比重量平均分子量為  $2.3 \times 10^4$ ，而聚苯乙烯對比數平均分子量為  $2.8 \times 10^3$ 。

### 實施例 4

#### < 使用傳送電洞聚合物 1 之元件之製作及評估 >

利用實施例 1 中獲得之傳送電洞聚合物 1 之甲苯溶液，藉由旋轉塗覆法在玻璃被作用物上形成 60 nm 厚的薄膜，根據濺鍍法，在其上有 200 nm 厚的銦錫氧化物薄膜形成。所獲得的是均勻的薄膜。俟於 120℃，減壓下乾燥該薄膜一小時後，三個 8-喹啉醇鋁 (Alq<sub>3</sub>) 以 70 nm 的厚度，0.1 至 0.2 nm/秒的速率積鍍，作為發光層/傳送電子層。最後，鋁-鋰合金 (Al:Li = 200:1 左右，重量比) 以 100 nm 的厚度積鍍在其上作為陰極，製作成有機電發光元件。在積鍍期間真空度為  $1 \times 10^{-5}$  Torr 以下。

至於此元件，在 4.0 V 的應用電壓，其光線強度達到 1 cd/m<sup>2</sup> 以上，而在 6.5 V 有擁有 8.8 mA/cm<sup>2</sup> 的電流密度的電流流動者。因此，可以觀察到具有光線度 230 cd/m<sup>2</sup> 的均勻的綠色電發光光線之發射。此時，發光效能為 2.60 cd/A。該光線強度幾乎與電流密度成正比。Alq<sub>3</sub> 電發光光線之發射，係藉由電發光光譜與 Alq<sub>3</sub> 薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實來加以確定。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

總

## 五、發明說明 ( 57 )

## 實施例 5

## &lt; 使用傳送電洞聚合物 3 之元件之製作及評估 &gt;

在與實施例 4 中所述之方法相同的方法中，除了使用傳送電洞聚合物 3 來代替傳送電洞聚合物 1 以外，其餘方法皆相同地來製作有機電發光元件。

至於此元件，在 5 . 0 V 的應用電壓，其光線強度達到 1 c d / m<sup>2</sup> 以上，而在 8 . 5 V 有擁有 9 . 2 m A / c m<sup>2</sup> 的電流密度之電流流動著。因此，可以觀察到光線強度 19.4 c d / m<sup>2</sup> 的均勻的綠色電發光光線之發射。此時，發光效能為 2 . 12 c d / A。該光線強度與電流密度幾乎成正比。Alq<sub>3</sub> 發射的電發光光線，係藉由電發光光譜與 Alq<sub>3</sub> 薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實來加以確定。

此元件以 25 m A / c m<sup>2</sup> 的電流密度，於氮氣流中連續地驅動著。結果，俟 30 小時之後，驅動電壓從 7 . 7 V 微幅增加至 9 . 2 V。

## 參考例 4

## &lt; 發光聚合物 1 之合成 &gt;

於 N，N - 二甲基甲醯胺溶劑中，2，5 - 二辛氧基 - 對二甲苯二氯與三苯磷反應合成磷鹽。生成的磷鹽 47 . 78 g 與對酞醛 5 . 5 g 於乙醇 / 三氯甲烷混合溶劑中溶解。把含有 5 . 4 g 乙醇鋰之乙醇 / 三氯甲烷混合溶液滴狀地加至磷鹽與二醛之乙醇溶液中，接著起聚合作用。於生成的反應溶液中，加入 1 - 茈菴醛，再滴狀地加

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 58 )

入含有乙醇鋰之乙醇溶液，然後令該混合溶液於室溫下聚合 3 個小時。俟反應溶液於室溫下靜置隔夜之後，利用過濾法收集沈澱物，以乙醇洗濯該沈澱物，並於三氯甲烷中溶解。把乙醇加至溶液中，再次生成沈澱物。乾燥該沈澱物以獲得重量為 8 份的聚合物。

我們稱此聚合物作「發光聚合物 1」。以單體充填比率來計算發光聚合物 1 之重複單位，而其莫耳比則顯示於下。利用  $^1\text{H-NMR}$  來確定聚合物在分子的末端有苊基基團。

其中兩個重複單元之莫耳比為 50 : 50，而且兩個重複單元彼此鏈接。

發光聚合物 1 之聚苯乙烯對比數平均分子量為  $4.0 \times 10^3$ 。發光聚合物 1 之結構，係藉由紅外線吸收光譜與  $\text{NMR}$  加以確定。

### 實施例 6

#### < 使用傳送電洞聚合物 1 之元件之製作與評估 >

使用實施例 1 中所獲得之傳送電洞聚合物 1 之甲苯溶液，藉由旋轉塗覆法在玻璃被作用物上形成 55 nm 厚的薄膜根據濺鍍法，在其上形成 200 nm 厚的銦錫氧化物薄膜。所獲得的是均勻的薄膜。在此薄膜的上面，以旋轉

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

## 五、發明說明 (59)

塗覆法將參考例 4 中所得到的發光聚合物 1 之 2 % 苯烷溶液塗覆上去。然後，三個 8 - 喹啉醇鋁 (Alq<sub>3</sub>) 以 50 nm 的厚度，0.1 至 0.2 nm / 秒的速率積鍍，作為傳送電子層。最後，鋁 - 鋰合金 (Al : Li = 200 : 1 左右，重量比) 以 40 nm 的厚度積鍍在其上作為陰極，製作成有機電發光元件。在積鍍期間真空度為  $1 \times 10^{-5}$  Torr 以下。

至於此元件，在 5.5 V 的應用電壓，其光線強度達到  $1 \text{ cd} / \text{m}^2$  以上，而在 8.3 V 觀察到具有光線強度  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  的均勻黃綠色電發光光線之發射。此時，發光效能為  $3.0 \text{ cd} / \text{A}$ 。該光線強度與電流密度幾乎成正比。發光聚合物 1 所發射的電發光光線，係藉由電發光光譜與發光聚合物 1 薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實來加以確定。

此元件以  $25 \text{ mA} / \text{cm}^2$  的電流密度，於氮氣流中連續地驅動著。結果，剛開始的光線強度是  $549 \text{ cd} / \text{m}^2$ ，但俟 50 小時之後，光線強度為  $210 \text{ cd} / \text{m}^2$  左右。在此期間，驅動電壓從 11 V 增加至 18 V。

### 實施例 7

#### < 使用傳送電洞聚合物 2 之元件之製作與評估 >

在與實施例 6 中所述之方法相同的方法中，除了使用傳送電洞聚合物 2 來代替傳送電洞聚合物 1 以外，其餘方法皆相同地來製作元件。此時，傳送電洞聚合物之薄膜厚

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明 (60)

度為  $25 \text{ nm}$  左右。

至於此元件，在  $4.25 \text{ V}$  的應用電壓，其光線強度達到  $1 \text{ cd/m}^2$  以上，而在  $6.3 \text{ V}$  觀察到具有光線強度  $100 \text{ cd/m}^2$  的均勻黃綠色電發光光線之發射。此時，發光效能為  $3.0 \text{ cd/A}$ 。該光線強度與電流密度幾乎成正比。發光聚合物 1 的電發光光線之發射，係藉由電發光光譜與發光聚合物 1 薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實來加以確定。

此元件以  $25 \text{ cd/m}^2$  的電流密度，於氮氣流中連續地驅動著。結果，剛開始的光線強度是  $625 \text{ cd/m}^2$ ，但俟 50 小時之後，光線強度為  $503 \text{ cd/m}^2$  左右。在此期間，驅動電壓從  $7.8 \text{ V}$  略微增加至  $9.7 \text{ V}$ 。

### 比較例 1

#### < 元件之製作與評估 >

在與實施例 5 中所述之方法相同的方法中，除利用浸漬法使用聚乙炔吡啶之二氫甲烷溶液代替傳送電洞聚合物 3 來形成薄膜以外，其餘方法皆相同地來製作有機電發光元件。

至於此元件，在  $4.25 \text{ V}$  的應用電壓，其光線強度達到  $1 \text{ cd/m}^2$  以上，而在  $6.5 \text{ V}$  有具有電流密度  $17.1 \text{ mA/cm}^2$  之電流流動。因此，我們觀察到具有光線強度  $288.2 \text{ cd/m}^2$  之均勻的綠色電發光光線之發射。此時，發光效能為  $1.68 \text{ cd/A}$ 。該光線強度

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線



## 五、發明說明 (61)

與電流密度幾乎成正比。A l q, 電發光光線之發射, 係藉由電發光光譜與 A l q, 薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實來加以確定。

此元件以  $25 \text{ mA} / \text{cm}^2$  的電流密度, 於氮氣流中連續地驅動著。結果, 驅動電壓在 30 個小時之後, 從  $5.7 \text{ V}$  增加至  $7.8 \text{ V}$ 。

### 比較例 2

#### < 元件之製作與評估 >

在與實施例 6 中所述之方法相同的方法中, 除了利用浸漬法使用聚乙烯吡啶之二氫甲烷溶液代替傳送電洞聚合物 1 形成薄膜, 以作為傳送電洞聚合物以外, 其餘方法皆相同地來製作有機電發光元件。

至於此元件, 在  $5.0 \text{ V}$  的應用電壓, 其光線強度達到  $1 \text{ cd} / \text{m}^2$  以上, 而在  $7.6 \text{ V}$  我們觀察到具有光線強度  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  的均勻綠色電發光光線的發射。此時, 發光效能為  $3.3 \text{ cd} / \text{A}$ 。該光線強度與電流密度幾乎成正比。

此元件以  $25 \text{ mA} / \text{cm}^2$  的電流密度, 於氮氣流中連續地驅動著。結果, 剛開始的光線強度為  $670 \text{ cd} / \text{m}^2$ , 但俟 50 小時之後, 光線強度降為  $256 \text{ cd} / \text{m}^2$ , 而驅動電壓則從  $11 \text{ V}$  增加至  $19.8 \text{ V}$ 。

### 參考例 5

(請先閱讀背面之注意事項再填本頁)

訂

## 五、發明說明 ( 62 )

## &lt; 矽烷化合物 3 之合成 &gt;

於乾的氬氣氛下， $-78^{\circ}\text{C}$  的溫度下滴狀地把正丁基鋰／正己烷 ( 17 ml ) 加至以與參考例 2 相同的方法製得之  $\text{N}, \text{N}'$ -二苯基- $\text{N}, \text{N}'$ -雙 ( 3''-甲基苯基 )-1, 1'-聯苯基-4, 4'-二胺 ( 8.0 g ) 之二溴衍生物之乾四氫呋喃溶液中，製造出  $\text{N}, \text{N}'$ -二苯基- $\text{N}, \text{N}'$ -雙 ( 3''-甲基苯基 )-1, 1'-聯苯基-4, 4'-二胺之二鋰衍生物。

於乾的氬氣氛下，於  $-78^{\circ}\text{C}$  下，滴狀地把上述的  $\text{N}, \text{N}'$ -二苯基- $\text{N}, \text{N}'$ -雙 ( 3''-甲基苯基 )-1, 1'-聯苯基-4, 4'-二胺之二鋰衍生物加至二甲氧基甲基氯矽烷 ( 7.0 g ) 之乾四氫呋喃溶液中。俟於  $-78^{\circ}\text{C}$  攪拌 1 小時之後，使溫度回到室溫。俟蒸除掉過量的二甲氧基甲基氯矽烷及溶劑之後，加入乾的甲苯，並於乾的氬氣氛下利用玻璃濾器移除鋰鹽。俟蒸餾掉溶劑之後，我們得到帶有粘性的固體 ( 7.1 g )。藉由生成的反應生成物之核磁共振光譜 (  $^1\text{H}$ -NMR ) 來確定  $\text{N}, \text{N}'$ -二苯基- $\text{N}, \text{N}'$ -雙 ( 3''-甲基苯基 )-1, 1'-聯苯基-4, 4'-二胺之二甲氧基甲基甲矽烷基衍生物及雙 ( 二甲氧基甲基甲矽烷基 ) 衍生物的生成。( 在下文中，被稱作「矽烷化合物 3」 )。

$^1\text{H}$ -NMR : 0.40 [ s ] ( 鍵接在矽原子上的甲基 ) , 2.28 [ s ] ( 甲基基團 ) , 3.60 [ s ] ( 甲氧基基團 ) , 6.8 - 7.6 [ m ] ( 芳香族基團 )。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明 ( 63 )

### 實施例 8

81.4.13

#### < 傳送電洞聚合物 4 之合成 >

於矽烷化合物 3 ( 6 . 5 g ) 之乾的四氫呋喃溶液中，在伴有攪拌的情況下加入三乙胺 3 . 5 m l 與水 0 . 6 5 m l ，而於 6 0 °C 進一步攪拌。俟蒸除掉溶劑之後，藉由以四氫呋喃 / 2 - 丙醇行再沈澱法純化生成的固體，獲得白色固體 3 . 1 7 g 。在下文中，此物質被稱作「傳送電洞聚合物 4」。

在生成的傳送電洞聚合物 4 之核磁共振光譜 (  $^1\text{H}$  - NMR ) 中，我們觀察到鍵接在矽原子上的甲基基團的信號在 0 . 0 - 0 . 7 p p m 附近，苯環上甲基的寬譜信號在 1 . 8 - 2 . 4 p p m 附近，甲氧基基團之信號在 3 . 4 - 3 . 7 p p m 附近，而芳香質子之寬譜信號在 6 . 2 - 7 . 6 p p m 附近。

在紅外線吸收光譜中，我們觀察到起源於矽氧烷鍵的寬譜信號在  $1100\text{ cm}^{-1}$  與  $800\text{ cm}^{-1}$  附近，而起源於羥基基團的寬譜信號在  $3300\text{ cm}^{-1}$  附近。我們確定 N , N' - 二苯基 - N , N' - 雙 ( 3' - 甲基苯基 ) - 1 , 1' - 聯苯基 - 4 , 4' - 二胺基團，併入所獲得的聚合物中作為重複單元部份，而且由水解而產生的羥基基團部份未參與反應。

傳送電洞聚合物之分子量，係利用凝膠滲透層離法來量測。結果，聚苯乙烯對比重量平均分子量為  $2.2 \times$

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 64 )

$10^4$ ，而聚苯乙烯對比數平均分子量為  $6.2 \times 10^3$ 。

91.4.13

### 實施例 9

#### < 傳送電洞聚合物 5 之合成 >

於 15 ml 以與實施例 8 相同的方法合成的傳送電洞聚合物 4 ( 1.0 g ) 之四氫呋喃溶液中，加入 3 ml 三乙胺，再加入 1.7 g 三苯基氯矽烷，而於 55℃ 下攪拌。加水將過量的三苯基氯矽烷鈍化。俟蒸餾掉溶劑之後，將它溶於甲苯中，俟使用分液漏斗以水洗濯之後，分離出甲苯層，並蒸餾掉溶劑。藉由以四氫呋喃 / 2-丙醇行再沈澱法純化產生的固體，獲得白色固體 0.85 g。在下文中，此物質被稱作“傳送電洞聚合物 5”。

從生成的傳送電洞聚合物 5 之核磁共振吸收光譜 (  $^1\text{H}$  - NMR ) 中信號之積分強度，我們確定有三苯基甲矽烷基基團在其中。

在紅外線吸收光譜中，雖然強度微弱，仍然可以觀察到在  $3300\text{ cm}^{-1}$  附近有來源於羥基基團的寬譜信號。我們確定有羥基基團保存了下來。傳送電洞聚合物 5 之分子量，係藉由凝膠滲透層離法來量測，而聚苯乙烯對比重量平均分子量為  $2.4 \times 10^4$ ，聚苯乙烯對比重量平均分子量為  $2.4 \times 10^4$ ，聚苯乙烯對比數平均分子量為  $7.9 \times 10^3$ 。

#### < 傳送電洞聚合物 6 之合成 >

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

修正  
年月日  
補充

## 五、發明說明 (65)

於 20 ml 上述的傳送電洞聚合物 5 (0.65 g) 之四氫呋喃溶液中，加入 4 ml 三乙胺，再加入 0.23 g 三甲基氫矽烷，並於室溫下攪拌。俟以同實施例 9 之方法來逐步進行之後，以四氫呋喃／乙醇行再沈澱法純化生成的固體，獲得白色固體 0.62 g。在下文中，此物質被稱作“傳送電洞聚合物 6”。

在生成物傳送電洞聚合物 6 之核磁共振吸收光譜 ( $^1\text{H}$ -NMR) 中，我們觀察到三甲基甲矽烷基基團之甲基) 信號是在  $-0.1 - 0.1 \text{ ppm}$  附近，而且我們確定有三甲基甲矽烷基基團在其中。在紅外線吸收光譜中  $3300 \text{ cm}^{-1}$  附近看不到有信號，我們確定沒有羥基基團保留下來。傳送電洞聚合物 6 之分子量，係藉由凝膠滲透層離法加以量測，而聚苯乙烯對比重量平均分子量為  $2.5 \times 10^4$ ，聚苯乙烯對比數平均分子量為  $8.1 \times 10^3$ 。

### 實施例 10

#### < 傳送電洞聚合物 7 之合成 >

於 20 ml 以與實施例 9 相同之方法合成的傳送電洞聚合物 5 (0.65 g) 之四氫呋喃溶液中，加入三乙胺 4 ml，再加入二苯基甲基氫矽烷 0.43 g，並於  $55^\circ\text{C}$  下攪拌。俟以同實施例 9 之方法來逐步進行之後，藉由以四氫呋喃／乙醇行再沈澱法純化生成的固體，而獲得白色固體 0.48 g。在下文中，此物質稱作“傳送電洞聚

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

## 五、發明說明 (66)

合物 7''。

在生成的傳送電洞聚合物 7 之核磁共振吸收光譜 ( $^1\text{H}$  - NMR) 中，我們觀察到二苯基甲基甲矽烷基基團之甲基信號在  $0.4 - 0.6 \text{ ppm}$  附近，而且我們確定有二苯基甲基甲矽烷基基團在其中。在紅外線吸收光譜中，在  $3300 \text{ cm}^{-1}$  附近看不到有信號，我們確定沒有羥基基團留了下來。傳送電洞聚合物 7 之分子量，係藉由凝膠滲透層離法加以量測，而聚苯乙烯對比重量平均分子量為  $2.9 \times 10^4$ ，聚苯乙烯對比數平均分子量為  $9.5 \times 10^3$ 。

## 參考例 6

< 4 - (2' - (1'' - 苈基) 乙烯基) 溴苯之合成 >

於乾的丙酮溶劑中，4 - 溴苈基溴 (Tokyo kasei 的產品) 與三苯磷反應，而獲得磷鹽。於生成的磷鹽 45 g 與 1 - 苈羧醛 (Aldrich 公司產品) 24.3 g 之乾乙醇溶液中，滴狀地加入乙醇鋰 (把鋰 1.5 g 與乾乙醇 100 ml 反應而獲得) 之乙醇溶液，而製得 4 - (2' - (1'' - 苈基) 乙烯基) 溴苯。藉由矽膠管柱層離法來純化，而獲得黃色固體 34.9 g。

< 4 - (2' - (1'' - 苈基) 乙烯基) 二甲基氫矽烷之合成 >

就與參考例 1 相同的方法而論，於  $-78^\circ\text{C}$ ，乾的氫

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線



# 五、發明說明 ( 67 )

氣氛下，以正丁基鋰／正己烷溶液之乾的四氫呋喃溶液鋰  
 氧化 4 - ( 2 ' - ( 1 ' - 苈基 ) 乙烯基 ) 溴苯，然後與  
 二甲基二氯矽烷反應。經由生成的產物之核磁共振光譜之  
 助，我們確定 4 - ( 2 ' - ( 1 ' - 苈基 ) 乙烯基 ) 二甲  
 基氯矽烷的生成。

## 實施例 1 1

### < 傳送電洞聚合物 8 之合成 >

於 1 5 m l 以與實施例 8 相同的方法合成的傳送電洞  
 聚合物 4 ( 1 . 0 g ) 之四氫呋喃溶液中，加入三乙胺 3  
 m l，再加入 4 - ( 2 ' - ( 1 ' - 苈基 ) 乙烯基 ) 二甲  
 基氯矽烷 1 . 7 g，並於室溫下攪拌。俟以同實施例 9 之  
 方法來逐步進行之後，以四氫呋喃／2 - 丙醇行再沈澱法  
 純化生成物的固體，而獲得白色固體 0 . 9 8 g。在下文  
 中，此物質被稱為「傳送電洞聚合物 8」。

在生成的傳送電洞聚合物 8 之核磁共振吸收光譜 ( <sup>1</sup> H  
 - N M R ) 中，我們觀察到 4 - ( 2 ' - ( 1 ' - 苈基 )  
 乙烯基 ) 二甲基甲矽烷基基團之芳香質子之信號在 7 . 6  
 - 8 . 5 p p m 附近，而且我們確定有 4 - ( 2 ' - ( 1 ' - 苈基 )  
 乙烯基 ) 二甲基甲矽烷基基團在其中。在紅  
 外線吸收光譜中，在 3 3 0 0 c m <sup>-1</sup> 附近看不到有信號，  
 我們確定沒有羥基基團保留下來。傳送電洞聚合物 8 之  
 分子量，係藉由凝膠滲透層離法來量測，而聚苯乙烯對比  
 重量平均分子量為 2 . 8 × 1 0 <sup>4</sup>，聚苯乙烯對比數平均分

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 (68)

子量為  $7.0 \times 10^3$ 。

### 參考例 7

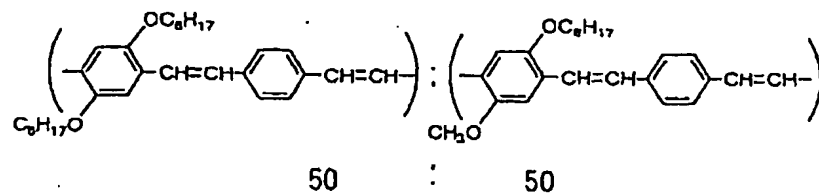
#### <發光聚合物 2 之合成>

於 N, N - 二甲基甲醯胺溶劑中，把 2, 5 - 二辛氧基 - 對苯二甲基二氯與三苯膦反應，製得磷鹽。4.78 g 生成的磷鹽，同樣獲得 4.28 g 的 2 - 甲氧基 - 5 - 辛氧基 - 對苯二甲基二氯之磷鹽，於乙醇 80 g / 三氯甲烷 100 g 之混合溶劑中將對酞醛 101 g 與 1 - 茈菝醛 1.15 g 溶解。

滴狀地加入甲醇鋰 10 ml / 乙醇 40 ml 之 12% 甲醇溶液混合溶液至磷鹽與醛之乙醇 / 三氯甲烷混合溶液中，然後於室溫下進一步反應 4 個小時。俟於室溫下靜置隔夜之後，收集沈澱物，並以乙醇洗濯。然後以甲苯溶解該沈澱物，再添加乙醇行再沈澱法兩次加以純化。俟以減壓乾燥之後，獲得發光聚合物 2.0 g。

我們稱此物質作「發光聚合物 2」。以所充填的單體比率來計算的發光聚合物 2 之重複單元及其莫耳比乃顯示於下。

我們從  $^1\text{H} - \text{NMR}$  確定分子的末端有茈菝基基團的組合。



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

水



五、發明說明 ( 69 )

91.4.13

此發光聚合物 2 之聚苯乙烯對比數平均分子量為  $2.5 \times 10^3$ 。藉由紅外線吸收光譜與 NMR 來確定發光聚合物 2 之結構。

實施例 1 2

< 使用傳送電洞聚合物 6 之元件之製作與評估 >

於上面有根據濺鍍法所構成 200 nm 厚的銦錫氧化物薄膜之玻璃被作用物之上，使用實施例 9 之生成的傳送電洞聚合物 6 之甲苯溶液，以旋轉塗覆法形成 60 nm 厚的薄膜。所獲得的是均勻的薄膜。

在此薄膜的上面，旋轉塗覆上參考例 7 中所獲得的發光聚合物 2 之 2% 苯烷溶液。接著，如傳送電子層般，三個 8-喹啉醇鋁 (Alq<sub>3</sub>) 以 0.1 m/s 的速率，積鍍 40 nm 的厚度。

最後，充作陰極的鋁鋰合金 (重量比 Al : Li = 200 : 1 左右) 在其上積鍍了 40 nm 厚，而製得有機電發光元件。在積鍍期間的真空度一直維持在  $1 \times 10^{-5}$  Torr 以下。

在該元件中，在 3.5 V 的應用電壓下，該光線強度為 1 cd/m<sup>2</sup> 以上，而且觀察到在 5.25 V 有 100 cd/m<sup>2</sup> 的黃綠色的均勻電發光光線強度。該光線強度與電流密度幾乎成正比。

發光聚合物 2 電發光光線的發射，係藉由電發光光譜

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

## 五、發明說明 ( 70 )

與發光聚合物 2 薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實加以確定。

此元件在氮氣氛中以  $25 \text{ mA} / \text{cm}^2$  的電流密度之連續驅動中，初期的光線強度為  $878 \text{ cd} / \text{m}^2$ ，俟 50 個小時之後光線強度為  $513 \text{ cd} / \text{m}^2$  左右。在此期間驅動電壓從  $6.8 \text{ V}$  上昇至  $14.5 \text{ V}$ 。

### 實施例 13

< 使用傳送電洞聚合物 7 之元件之製作與評估 >

以與實施例 12 相同的方法，除使用實施例 10 中所獲得之傳送電洞聚合物 7 之甲苯溶液代替實施例 12 之傳送電洞聚合物 6 之甲苯溶液以外，來製作元件。傳送電洞聚合物 7 之薄膜厚度為  $45 \text{ nm}$ 。

在此元件中，在應用電壓  $3.75 \text{ V}$  下，該光線強度為  $1 \text{ cd} / \text{m}^2$  以上，而在  $5.50 \text{ V}$  觀察到  $100 \text{ cd} / \text{m}^2$  的黃綠色均勻電發光光線強度。

此時，發光效能為  $2.06 \text{ cd} / \text{A}$ 。該光線強度與電流密度幾乎成正比。

發光聚合物 2 電發光光線的發射，係藉由電發光光譜與發光聚合物 2 薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實加以確定。

在此元件於氮氣氛中以  $25 \text{ mA} / \text{cm}^2$  的電流密度之連續驅動中，初期的光線強度為  $602 \text{ cd} / \text{m}^2$ ，俟 50 個小時之後光線強度為  $451 \text{ cd} / \text{m}^2$  左右。在此期間驅

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明 ( 71 )

動電壓從 6 . 5 V 上昇至 1 1 . 9 V 。

## 實施例 1 4

## &lt; 使用傳送電洞聚合物 8 之元件之製作與評估 &gt;

以與實施例 1 2 相同的方法，除使用傳送電洞聚合物 8 之甲苯溶液代替實施例 1 2 之傳送電洞聚合物 6 之甲苯溶液以外，來製造元件。傳送電洞聚合物 8 之薄膜厚度為 4 6 n m 。在該元件中，在應用電壓 3 . 5 0 V 下，該光線強度為 1 c d / m<sup>2</sup> 以上，而在 5 . 2 5 V 觀察到 1 0 0 c d / m<sup>2</sup> 的黃綠色的均勻電發光光線強度。

此時，發光效能為 2 . 8 3 c d / A 。該光線強度與電流密度幾乎成正比。

發光聚合物 2 電發光光線的發射，係藉由電發光光譜與發光聚合物薄膜之螢光光譜幾乎一致的事實加以確定。

在此元件於氮氣氛中以 2 5 m A / c m<sup>2</sup> 的電流密度之連續驅動中，在此期間驅動電壓從 6 . 4 V 上昇至 1 1 . 3 V 。

本發明之傳送電洞聚合物，擁有極佳的傳送電洞的性質，並且有優良的耐久性及薄膜成型性質。使用傳送電洞聚合物之有機電發光元件與傳統技藝相比較，具有極佳的發光特生，而且它的工業價值很大。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

FREE

AB  
B8  
C8  
D8

六、申請專利範圍

年 月 日

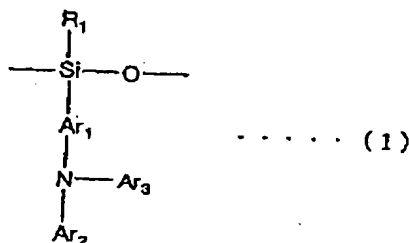
附件 A:

第 87111742 號專利申請案

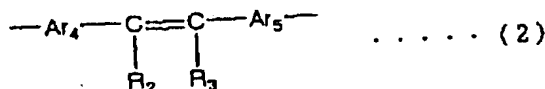
中文申請專利範圍修正本

民國 92 年 1 月 6 日修正

1. 一種傳送電洞之聚合物，其含有以下面的通式 (1) 來代表的重複結構單元，並且擁有  $10^3$  至  $10^7$  的聚苯乙烯約化數目平均分子量：



其中  $R_1$  代表具有 1 至 6 個碳原子的烷基基團或具有 6 至 20 個碳原子的芳基基團； $Ar_1$  代表具有 6 至 16 個碳原子的伸芳基基團，或代表以下面的通式 (2) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團； $Ar_2$  與  $Ar_3$  各代表具有 6 至 16 個碳原子之芳基基團，以下面的通式 (3) 來代表的芳香胺基團，或以下面的通式 (4) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團；並且可以在  $Ar_1$  與  $Ar_2$  之間，或  $Ar_1$  與  $Ar_3$  之間，或  $Ar_2$  與  $Ar_3$  之間形成環：



其中  $Ar_4$  與  $Ar_5$  各代表具有 6 至 12 個碳原子的伸芳基

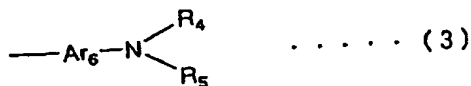
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

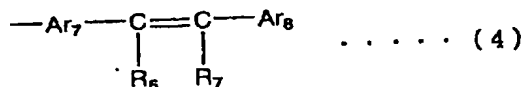
線

## 六、申請專利範圍

基團；R<sub>2</sub>與R<sub>3</sub>各代表氫原子、具有1至6個碳原子之烷基或具有6至12個碳原子之芳基：

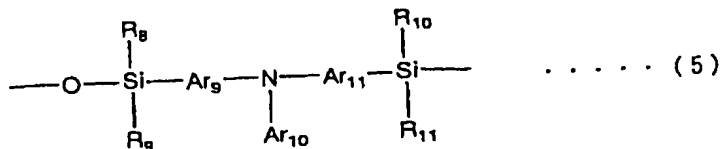


其中Ar<sub>6</sub>代表具有6至18個碳原子的伸芳基基團；R<sub>4</sub>與R<sub>5</sub>各代表具有1至10個碳原子之烷基或具有6至16個碳原子之芳基；並且可以在Ar<sub>6</sub>與R<sub>4</sub>之間，或Ar<sub>6</sub>與R<sub>5</sub>之間，或R<sub>4</sub>與R<sub>5</sub>之間形成環：



其中Ar<sub>7</sub>代表具有6至12個碳原子的伸芳基基團；R<sub>6</sub>與R<sub>7</sub>各代表氫原子、具有1至6個碳原子的烷基或具有6至12個碳原子的芳基；Ar<sub>8</sub>代表具有6至12個碳原子之芳基。

2. 一種傳送電洞之聚合物，其含有以下面的通式(5)來代表的重複結構單元，並且擁有10<sup>3</sup>至10<sup>7</sup>的聚苯乙烯約化數目平均分子量：



其中Ar<sub>9</sub>與Ar<sub>11</sub>各代表具有6至16個碳原子的伸芳基基團、以下面的通式(6)來代表的芳香胺基團、或以下面的通式(7)來代表的伸芳基伸乙烯基基團；Ar<sub>10</sub>

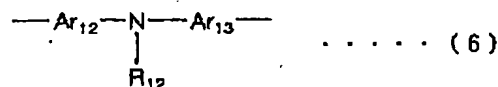
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

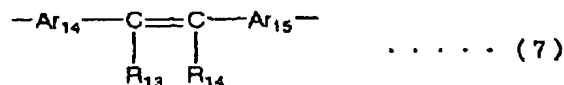
線

## 六、申請專利範圍

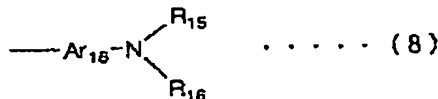
代表具有 6 至 16 個碳原子的芳基、以下面的通式 (8) 來代表的芳香胺基團、或以下面的通式 (9) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團；可以在  $Ar_9$  與  $Ar_{10}$  之間，或  $Ar_9$  與  $Ar_{11}$  之間，或  $Ar_{10}$  與  $Ar_{11}$  之間形成環；又  $R_8$ 、 $R_9$ 、 $R_{10}$  與  $R_{11}$  各代表羥基、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或烷氧基或具有 6 至 20 個碳原子之芳基、以下面的通式 (10) 或 (12) 來代表的基團、或二價的氧原子，該二價氧原子可藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鍵接在分子中鄰近矽原子的位置上：



其中  $Ar_{12}$  與  $Ar_{13}$  各代表具有 6 至 18 個碳原子之伸芳基基團； $R_{12}$  代表具有 1 至 10 個碳原子之烷基或具有 6 至 16 個碳原子之芳基；並且可在  $Ar_{12}$  與  $Ar_{13}$  之間，或  $Ar_{12}$  與  $R_{12}$  之間，或  $Ar_{13}$  與  $R_{12}$  之間形成環：



其中  $Ar_{14}$  與  $Ar_{15}$  各代表具有 6 至 12 個碳原子之伸芳基基團；而  $R_{13}$  與  $R_{14}$  各代表氫原子、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或具有 6 至 12 個碳原子的芳基：



其中  $Ar_{16}$  代表具有 6 至 18 個碳原子之伸芳基基團；

$R_{15}$  與  $R_{16}$  各代表具有 1 至 10 個碳原子之烷基或具有 6

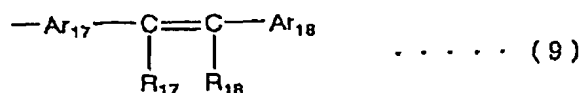
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

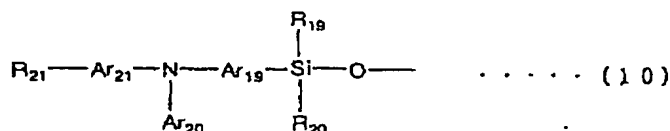
## 六、申請專利範圍

至 16 個碳原子之芳基；並且可以在  $Ar_{16}$  與  $R_{15}$  之間，或  $Ar_{16}$  與  $R_{16}$  之間，或  $R_{15}$  與  $R_{16}$  之間形成環：



其中  $Ar_{17}$  代表具有 6 至 12 個碳原子之伸芳基基團；

$R_{17}$  與  $R_{18}$  各代表氫原子、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或具有 6 至 12 個碳原子之芳基；而  $Ar_{18}$  代表具有 6 至 12 個碳原子之芳基：



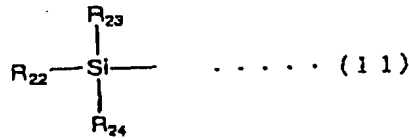
其中  $Ar_{19}$  與  $Ar_{21}$  各代表具有 6 至 16 個碳原子之伸芳基基團、以上面的通式 (6) 來代表的芳香胺基團、或以上面的通式 (7) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團； $Ar_{20}$  代表具有 6 至 16 個碳原子之芳基、以上面的通式 (8) 來代表的芳香胺基團、或以上面的通式 (9) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團；並且可以在  $Ar_{19}$  與  $Ar_{20}$  之間，或  $Ar_{19}$  與  $Ar_{21}$  之間，或  $Ar_{20}$  與  $Ar_{21}$  之間形成環； $R_{19}$  與  $R_{20}$  各代表羥基、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或烷氧基或具有 6 至 20 個碳原子之芳基、或二價的氧原子，該二價氧原子可藉由交聯而鍵接在分子內的矽原子上，或藉由交聯而鍵接在分子中鄰近矽原子的位置上； $R_{21}$  代表氫原子或以下面的通式 (11) 來代表的基團：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

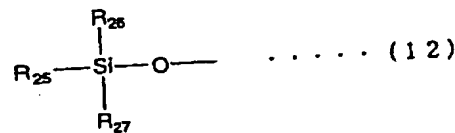
訂

線

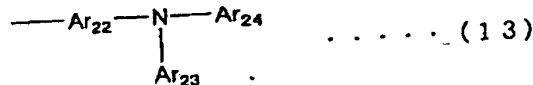
# 六、申請專利範圍



其中  $R_{22}$ 、 $R_{23}$  與  $R_{24}$  各代表經基、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或烷氧基或具有 6 至 20 個碳原子之芳基：



其中  $R_{25}$ 、 $R_{26}$  與  $R_{27}$  各代表具有 1 至 6 個碳原子之烷基或具有 6 至 20 個碳原子之芳基，或以上面的通式 (9) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團，或以下面的通式 (13) 來代表的芳香胺基團：



其中  $Ar_{22}$  代表具有 6 至 16 個碳原子之伸芳基基團、以上面的通式 (6) 來代表的芳香胺基團、或以上面的通式 (7) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團； $Ar_{23}$  與  $Ar_{24}$  各代表具有 6 至 18 個碳原子之芳基、以上面的通式 (8) 來代表的芳香胺基團或以上面的通式 (9) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團。

3. 如申請專利範圍第 2 項之傳送電洞聚合物，其中以上面通式 (12) 來代表的複合基團之量，基於除去該複合基團中所含矽原子以外之屬於該傳送電洞聚合物之矽原子總數計，為 10 莫耳%至 150 莫耳%，而經基基團

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

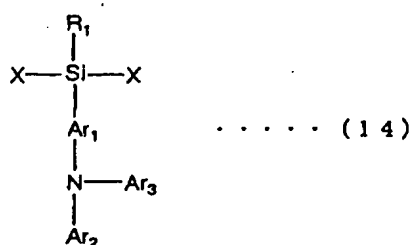
線



## 六、申請專利範圍

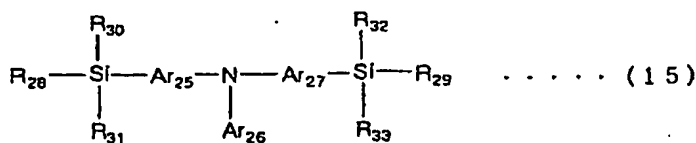
的含量，基於除去該複合基團中所含矽原子以外之屬於該傳送電洞聚合物之矽原子總數計，為 10 莫耳% 以下。

4. 一種製造申請專利範圍第 1 項傳送電洞之聚合物的方法，其中至少一種以下面的通式 (14) 來代表的矽烷化合物於醚溶劑或胺溶劑中受水解及縮合，反應溫度係在 0 至 100 °C 之範圍：



其中 X 代表鹵素原子或具有 1 至 3 個碳原子的烷氧基團；  
R<sub>1</sub>、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub> 與 Ar<sub>3</sub> 係如申請專利範圍第 1 項中所定義；並且可在 Ar<sub>1</sub> 與 Ar<sub>2</sub> 之間，或 Ar<sub>1</sub> 與 Ar<sub>3</sub> 之間，或 Ar<sub>2</sub> 與 Ar<sub>3</sub> 之間形成環。

5. 一種製造申請專利範圍第 2 項傳送電洞之聚合物的方法，其中至少一種以下面通式 (15) 來代表的矽烷化合物，或至少一種以下面通式 (15) 來代表的矽烷化合物與至少一種以下面通式 (16) 來代表的矽烷化合物之混合物，於醚溶劑或胺溶劑中受水解與縮合，反應溫度係在 0 至 100 °C 之範圍，



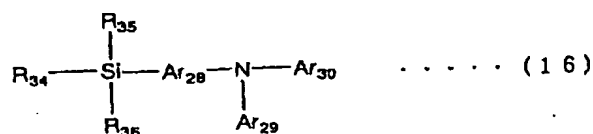
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

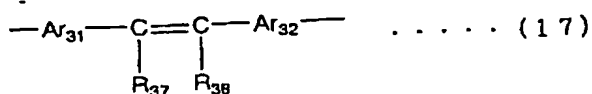
## 六、申請專利範圍

其中  $R_{30}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$  與  $R_{33}$  各代表鹵素原子、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或烷氧基或具有 6 至 20 個碳原子之芳基； $R_{28}$  與  $R_{29}$  各代表羥基或具有 1 至 3 個碳原子的烷氧基； $Ar_{25}$  與  $Ar_{27}$  係與申請專利範圍第 2 項之通式 (5) 中所定義的  $Ar_9$  相同，或與申請專利範圍第 2 項之通式 (10) 中所定義的  $Ar_{19}$  相同， $Ar_{26}$  係與申請專利範圍第 2 項之通式 (5) 中所定義的  $Ar_{10}$  相同；並且可在  $Ar_{25}$  與  $Ar_{26}$  之間，或  $Ar_{25}$  與  $Ar_{27}$  之間，或  $Ar_{26}$  與  $Ar_{27}$  之間形成環：



其中  $R_{35}$  與  $R_{36}$  各代表鹵素原子、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或烷氧基或具有 6 至 20 個碳原子之芳基； $R_{34}$  代表鹵素原子、具有 1 至 3 個碳原子之烷氧基； $Ar_{28}$  代表具有 6 至 16 個碳原子之伸芳基基團或以下面的通式 (17) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團：

$Ar_{29}$  與  $Ar_{30}$  各代表具有 6 至 16 個碳原子之芳基、以下面的通式 (18) 來代表的芳香胺基團或以下面的通式 (19) 來代表的伸芳基伸乙烯基基團；並且可在  $Ar_{28}$  與  $Ar_{29}$  之間，或  $Ar_{28}$  與  $Ar_{30}$  之間，或  $Ar_{29}$  與  $Ar_{30}$  之間形成環：



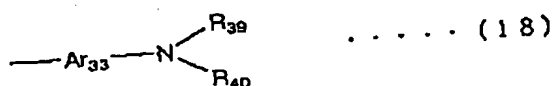
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

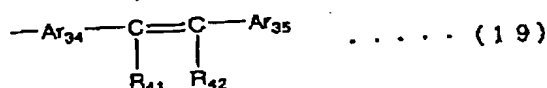
線

## 六、申請專利範圍

其中  $Ar_{31}$  與  $Ar_{32}$  各代表具有 6 至 12 個碳原子之伸芳基基團； $R_{37}$  與  $R_{38}$  各代表氫原子、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或具有 6 至 12 個碳原子之芳基：

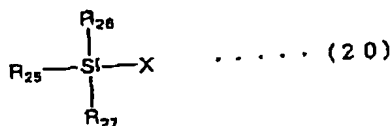


其中  $Ar_{33}$  代表具有 6 至 18 個碳原子之伸芳基基團； $R_{39}$  與  $R_{40}$  各代表具有 1 至 10 個碳原子之烷基或具有 6 至 16 個碳原子之芳基；並且可在  $Ar_{33}$  與  $R_{39}$  之間，或  $Ar_{33}$  與  $R_{40}$  之間，或  $R_{39}$  與  $R_{40}$  之間形成環：



其中  $Ar_{34}$  代表具有 6 至 12 個碳原子之伸芳基基團； $R_{41}$  與  $R_{42}$  各代表氫原子、具有 1 至 6 個碳原子之烷基或具有 6 至 12 個碳原子之芳基；而  $Ar_{35}$  代表具有 6 至 12 個碳原子之芳基。

6. 一種製造申請專利範圍第 2 項或第 3 項傳送電洞之聚合物之方法，其中由申請專利範圍第 5 項所獲得之傳送電洞之聚合物與下面通式 (20) 代表的化合物於醚溶劑或胺溶劑中反應，反應溫度係在 0 至 100℃ 之範圍，



其中 X 代表鹵素原子或具有 1 至 3 個碳原子之烷氧基； $R_{25}$ 、 $R_{26}$  與  $R_{27}$  乃如申請專利範圍第 2 項中所定義。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

## 六、申請專利範圍

7. 一種有機電發光元件，其含有陰極與陽極之電極對，其中至少有一者是透明的，或是半透明的，並且在電極之間形成至少一層的有機物質，其中有機物質層含有如申請專利範圍第1項至第3項中的任何一項所述之傳送電洞之聚合物。

8. 一種有機電發光元件，其含有陰極與陽極之電極對，其中至少有一者是透明的，或是半透明的，並且在電極之間形成發光層，其中發光層含有如申請專利範圍第1項至第3項中的任何一項所述的傳送電洞之聚合物。

9. 一種有機電發光元件，其含有陰極與陽極之電極對，其中至少有一者是透明的，或是半透明的，並且在電極之間形成發光層，其中傳送電洞層，它含有如申請專利範圍第1項至第3項中的任何一項所述的傳送電洞之聚合物，係就近供應給介於陽極與發光層之間的發光層。

10. 如申請專利範圍第8項或第9項之有機電發光元件，其中含有傳送電子化合物之傳送電子層，係就近供應給介於陽極與發光層之間的發光層。

11. 如申請專利範圍第8項或第9項之有機電發光元件，其中發光層含有發光聚合物，該發光聚合物含有以重複結構單元總數計在50莫耳%或以上的比例之下面通式(21)代表的重複結構單元，並且擁有 $10^3$ 至 $10^7$ 的聚苯乙烯約化數目平均分子量，



其中 $A_r$ 代表伸芳基基團，或具有4至20個碳原子之雜

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

## 六、申請專利範圍

環化合物基團，它參與了共軛鍵；並且 R 與 R' 各代表選自下列族群的基團：氫原子、具有 1 至 20 個碳原子之烷基、具有 6 至 20 個碳原子之芳基、具有 4 至 20 個碳原子之雜環化合物與氰基。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線